

Messung der Kernspingitterrelaxationszeit von magnetischen Verunreinigungen in nicht-ferromagnetischen Metallen durch Tiefemperaturkernorientierung

Inaugural-Dissertation zur Erlangung
der Doktorwürde
am Fachbereich Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Arnold Kettschau
aus Warburg

— ~~1983~~ —
1985

Messung der Kernspingitterrelaxationszeit
von magnetischen Verunreinigungen
in nicht-ferromagnetischen Metallen
durch Tieftemperaturkernorientierung

Inaugural - Dissertation zur Erlangung
der Doktorwürde
am Fachbereich Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von Arnold Kettschau aus Warburg

- 1983 -

Erster Prüfer : Prof. W. D. Brewer

Zweiter Prüfer : Prof. K. D. Schotte

Tag der letzten mündlichen Prüfung : 29.2.1984

INHALTSVERZEICHNIS

1.	Einleitung	5
2.	Theoretische Grundlagen	10
2.1.	Tieftemperaturkernorientierung	10
2.2.	Die statische Wechselwirkung - das Hyperfeinfeld	13
2.3.	Die dynamische Hyperfeinwechselwirkung - Relaxationszeit und Korringakonstante	16
2.4.	Systeme mit Lokalen Momenten	22
2.4.1.	Bedingungen für das Auftreten Lokaler Momente, Eigenschaften dieser Systeme	22
2.4.2.	Statische Hyperfeinwechselwirkungen an Lokalen Momenten	26
2.4.3.	Dynamische Hyperfeinwechselwirkungen an Lokalen Momenten	30
3.	Entwicklung eines experimentellen Verfahrens	31
3.0.	Vorwort	31
3.1.	Verfahren der schnellen Magnetfeldänderung	34
3.2.	Die Methode des schnellen Temperatursprungs	44
4.	Ergebnisse	56
4.1.	Durchführung der Experimente	56
4.1.1.	Proben und Probenvorbereitung	56
4.1.2.	Nachweis der gamma-Strahlung	57
4.1.3.	Zeitsteuerung des Temperaturzyklus	58
4.1.4.	Verfahren zum Fitten der Relaxations- Kurven	59
4.2.	Liste der Ergebnisse	62
4.2.1.	Messkurven mit Fit	62
4.2.2.	Die Frage magnetfeldabhängiger thermischer Effekte	83

4.2.3.	Zusammenfassung der Ergebnisse	87
5.	Diskussion der Ergebnisse	89
5.1.	Vergleich mit der Korringaformel	89
5.2.	Vergleich mit den Berechnungen von Walstedt und Narath	91
5.3.	Vergleich mit der elektronischen Relaxa- tionsrate	97
6.	Literaturverzeichnis	100
7.	Zusammenfassung	106
8.	Anhang	107

Einleitung

Nur wenige Messungen mit Tieftemperaturkernorientierung (NO) beschäftigen sich auch mit der Bestimmung der Kernspingitter-relaxationszeit (T_1 , SLR). (Präzisierung des Begriffes T_1 im weiteren Teil der Arbeit). Es soll jedoch daran erinnert werden, daß eine genügend kurze SLR - Zeit auch für NO - Messungen zu den experimentellen Voraussetzungen zählt, die über die Durchführbarkeit eines Experimentes entscheidet. Denn T_1 kann bei einigen metallischen Systemen (z.B. CrFe) den Wert von 12 h erreichen und damit länger sein als der Temperaturzyklus z.B. eines Entmagnetisierungskryostaten.

In ähnlicher Weise tritt die SLR - Zeit als "beschränkender" experimenteller Parameter bei der konventionellen NMR auf, dadurch daß durch sie der Energiefluß der eingestrahlten Hochfrequenzleistung über das Kernspinsystem begrenzt wird.

Einerseits ist die T_1 also eine experimentelle Größe, die bekannt sein muß, um zu entscheiden, ob ein bestimmtes Experiment durchführbar ist oder nicht; andererseits kann eine ähnliche Information aus T_1 wie aus dem Hyperfeinfeld gewonnen werden.

Einerseits sind T_1 und das Hyperfeinfeld unabhängige und auch getrennt meßbare Parameter der Hyperfeinwechselwirkung, für einige Systeme sind jedoch empirische Korrelationen veröffentlicht geworden. Ein bekanntes Beispiel ist die Korringarelation (KOR 51) für nicht magnetische Wirtsgitter; die Knightshift und T_1 sind in diesem Modell korreliert, da zu beiden Größen die Spindichte der s-Elektronen am Kernort beiträgt.

Eine andere empirische Korrelation wurde von Stone et. al. (STO 71 a) für Eisen als Wirtsmetall gefunden zwischen der NMR-Frequenz und der Korringa-Konstanten c_K .

$$\omega^2 \cdot c_K = \text{const. mit } \omega = \gamma \cdot B_{\text{Hyp}}$$

Ein Vergleich mit experimentellen Werten ist enthalten in den Referenzen (KOP 82) und (KLE 83). Eine Interpretation dieser Korrelation ist, daß T_1 im wesentlichen durch die zeitliche Fluktuation des Hyperfeinfeldes gegeben ist. Stone's Regel ist also ein Test dafür, wie weit B_{Hyp} und die Fluktuation desselben korreliert sind.

Diese Beispiele zeigen, daß T_1 nicht eine aus anderen Hyperfeinparametern ableitbare Größe ist, sondern ein unabhängiger Parameter, der auch eine unabhängige Information liefern kann. Für einige Modelle lassen sich empirische Korrelationen angeben, die eine Abschätzung darüber erlauben sollen, ob ein Experiment durchführbar ist oder an einem für das Experiment unbequemen T_1 scheitern muß.

Zwei Gruppen von Meßmethoden bieten sich an zur Messung der Kernspingitterrelaxationszeiten: NMR und Tieftemperaturkernorientierung. In der NO wurden mehrere Methoden zur Messung von T_1 entwickelt. Eine Übersicht enthalten die Arbeiten (KLE 83) und (KOP 82).

Die besonderen Vorteile des "Thermal Cycling", dem zyklischen Ändern der Gittertemperatur, sei noch erwähnt. Es ist die einzige Methode, bei der die Relaxation zwischen zwei genau bekannten Zuständen, - nämlich dem thermischen Gleichgewicht der Anfangs- und Endtemperatur -, stattfindet und damit eine genaue Berechnung der Korringakonstanten erlaubt.

Die in dieser Arbeit benutzte Methode hat dieses gemein mit der von Kopp und Klein benutzten Methode (bei KLE 83 als "Fast Heating" bezeichnet) und wurde auf dieser aufbauend entwickelt.

Welche Systeme bieten sich nun zur Messung an?

Die meisten Messungen wurden bisher an Verunreinigungen in Eisen durchgeführt. (Siehe dazu den Review-Artikel TUR 80). Bei nicht ferromagnetischen Metallen mit magnetischen Verunreinigungen unterscheidet man Systeme mit schwacher Hyperfeinwechselwirkung und solche mit starker Hyperfeinwechselwirkung, oft auch als Systeme mit Lokalen Momenten bezeichnet.

Bei der ersten Gruppe - charakterisiert durch eine Knight-shift um einige Prozent - lassen sich die T_1 nach der Theorie von Korringa (KOR 51) berechnen.

Die zweite Gruppe (typ. Vertreter MnCu) zeichnet sich dadurch aus, daß das Verunreinigungsatom ein sog. Lokales Moment besitzt. Die Folge ist eine starke Hyperfeinwechselwirkung (B_{Hyp} ca. 10 - 40 T). Die Extrapolation der Korringaformel liefert für diese Systeme ein T_1 im Temperaturbereich von 30 mK von unter 100 nsec bei Feldern unter 1 T.

Die Messung dieser Relaxationszeiten ist das Hauptziel dieser Arbeit. Eine Messung stieß bisher auf große experimentelle Schwierigkeiten. Eine detaillierte theoretische Berechnung wurde von Walstedt und Narath (WAL 72) durchgeführt.

Die hier entwickelte Methode ist aus zwei Gründen interessant:

Sie erlaubt die Messung von T_1 für eine interessante Stoffklasse, die ausgezeichnet ist durch magnetische Verunreinigungen in Nichtferromagneten mit starker Hyperfeinwechselwirkung, diese sind auch bekannt im Zusammenhang mit den Problemen des Lokalen Momentes, des Kondoeffektes und - bei höheren Konzentrationen - mit dem Spin-Glas-Verhalten.

Die Methode selbst ist dadurch interessant, daß gezeigt wird, daß im Millikelvin-Bereich Temperaturzyklen mit einer Zeitauflösung von 10 Mikrosekunden ohne nennenswerte Wärmelast für den Kryostaten möglich sind.

Typische Temperaturänderungen betragen dabei bis zu 100% bei einer Wiederholungsrate von z.B. 50 Hz.

Die Temperaturänderungen dT/dt betragen dabei z.B. 10mK/10 μ s entspr. 10^3 K/s.

Das steht in scheinbarem Widerspruch zu den immer längeren Zeitkonstanten der Kryostaten im mK-Bereich und immer geringeren Kühleistungen mit geringer werdender Endtemperatur.

Einige Versuche wurden unternommen, die Relaxationszeiten mit anderen Methoden zu messen.

Der Artikel von Spanjaard et al. (SFA 73) diskutiert ausführlich die Probleme einer NMR-CN - Messung an diesen Systemen und kommt zu dem dem Schluß, daß diese sehr schwierig sein werden. Ein zusätzliches Problem besteht auch hier in den kurzen Relaxationszeiten: die Methode NMR-CN verlangt, daß zu gleicher Zeit ein großer Teil der Anisotropie zerstört ist. Dies würde zu große Hochfrequenzleistungen erfordern. Die Methode NMR-CN bleibt daher wohl auf ferromagnetische Systeme beschränkt.

Konventionelle NMR hat den Nachteil, daß relativ hohe Konzentrationen erforderlich sind.

Kume und Mizoguchi (KUM 75) führten eine Messung an ^{55}Mn in Cu durch. ($p = 45$ und 100 ppm, $T = 150 - 300$ K ; diese Arbeit $p = 0.2$ ppm, $T = 30$ mK).

Die Relaxationszeit kann jedoch nur aus der Linienbreite geschätzt werden, zur Auswertung müssen Annahmen über andere Beiträge zur Linienverbreiterung gemacht werden.

Neutronenstreuungsmessungen an Mn - Verunreinigungen in Cu, Ag und Au wurden von Murani (MUR 81) durchgeführt. Die Konzentrationen liegen hier noch höher (einige % bei $T = 150 - 200$ K), T_1 ist ebenfalls nicht direkt meßbar, die Feldabhängigkeit bleibt hierbei offen.

Von Loewenhaupt (LOE 76) wurden Neutronenstreuungsmessungen im Nullfeld an CuFe durchgeführt. Die Konzentrationen lagen hier bei $600 - 4800$ ppm bei 15 K bis 300 K.

Die hier vorgestellte Methode hat dagegen den Vorteil, daß sie T_1 direkt messen kann, und zwar bei Konzentrationen unter 0.2 ppm (bei ca. 30 mK).

Voraussetzung sind Temperaturen und Magnetfelder, die für den Kernorientierungseffekt notwendig sind.

Die Zeitauflösung erreicht dabei 10 μsec .

Die Kernspingitterrelaxationszeit selbst wird dabei als eine für die dynamischen Eigenschaften des Lokalen Momentes empfindliche Messgröße angesehen.

Dagegen wird das bisher nur meßbare Hyperfeinfeld vom statischen Verhalten des Lokalen Momentes bestimmt.

2. Theoretische Grundlagen

2.1. Tieftemperatur-Kernorientierung

Bekanntlich ist die γ -Strahlung eines Ensembles von Atomkernen räumlich nicht isotrop, dieser Effekt ist jedoch nur meßbar, wenn für die Atomkerne eine ausgezeichnete Raumrichtung definiert werden kann (z.B. durch ein zuvor emittiertes γ -Quant bei der γ - γ -Winkelkorrelation, auch zu bezeichnen als "dynamische Kernorientierung").

Die Tieftemperatur-Kernorientierung kann daher als "statische Kernorientierung" mit Hilfe eines externen Magnetfeldes betrachtet werden. Die Bedingung dafür, daß eine räumliche Anisotropie der Kern- γ -Strahlung beobachtet werden kann, ist, daß die -im externen Magnetfeld aufgespaltenen- Kern-Zeeman-Niveaus ungleich besetzt sind, d.h.:

$$\mu B_{\text{eff}} / I \leq k_B T$$

μ = Kernmoment, I = Kernspin, B_{eff} = Magnetfeld am Kernort, k_B = Boltzmannkonstante, T = Temperatur.

Diese Bedingung ist mit supraleitenden Magneten ($B \approx 5 \text{ T}$) erst bei Temperaturen unter 5 mK zu erreichen; bei Systemen mit starken Hyperfeinfeldern ($B_{\text{Hyp}} \approx 50 \text{ T}$) reichen Temperaturen $T \approx 50 \text{ mK}$. Der größte Teil der Kernorientierungsmessungen wurde daher an Systemen mit starken Hyperfeinfeldern durchgeführt; Messungen an Systemen ohne Hyperfeinfeld werden in der Literatur als "Brute Force" Messungen bezeichnet.

Die Winkelverteilung der γ -Strahlung läßt sich (wie jede andere differenzierbare Funktion von θ) als Summe von Legendre Polynomen darstellen:

$$W(\theta) = 1 + \sum_{\nu} A_{\nu} P_{\nu}(\cos \theta), \quad \nu = 1, \infty$$

Man kann zeigen, daß die Terme mit $v = (1, 3, 5, \dots)$ aus Paritätsgründen (NO 83) null sind, wenn γ -Strahlung beobachtet wird. Bei Beobachtung z.B. von Elektronen gilt dies wegen der Paritätsverletzung bei Beta - Zerfall nicht. (Experiment von Wu zur Paritätsverletzung bei der schwachen Wechselwirkung.)

Aus Symmetriegründen ist $v \leq 2 I$, wobei $2 I$ der kleinste Kernspin in der Zerfallskette vor dem beobachteten Niveau ist, und es gilt $v \leq 2 L$, wobei L der zur Multipolordnung der beobachteten Strahlung gehörende Drehimpuls ist.

In der überwiegenden Zahl der Fälle ist daher nur der P_2 - und der P_4 - Term von null verschieden.

In der "Hochtemperaturnäherung" (entsprechend nahezu Gleichbesetzung der Kern-Zeemanniveaus) sind die höheren Terme außerdem numerisch vernachlässigbar.

Die Koeffizienten der Legendre-Reihen werden üblicher Weise wie folgt dargestellt:

$$W(\theta) = 1 + \sum_k Q_k U_k F_k B_k P_k(\cos \theta)$$

Dabei berücksichtigen die

Q_k Mittelung über den Raumwinkel, indem die γ -Quanten den Detektor treffen können. (abhängig von der Geometrie der Versuchsanordnung),

U_k den Einfluß der Kernübergänge, die in der Zerfallskaskade vor dem beobachteten Niveau liegen,

F_k den Einfluß des beobachteten Niveaus (Multipolarität, ΔI)

Die B_k sind Funktionen der Besetzungszahlen der Kern-Zeeman-Niveaus und damit des Orientierungsparameters β

$$\beta = \frac{\Delta E}{k_B T} \quad (\Delta E = \mu_B / I \text{ für magnetische Wechselwirkung})$$

und enthalten damit neben den P_k die eigentliche Festkörperinformation.

Es ist nun zu beachten, daß diese - übliche - Darstellung über T_1 die Voraussetzungen macht, daß die Lebensdauer des Ausgangszustands lang ist gegenüber T_1 , und die Lebensdauern der Zwischenzustände und des beobachteten Zustandes (τ) kurz gegenüber T_1 . Bei den meisten Isotopen und so auch beim hier benutzten Mn-54 ist diese Bedingung erfüllt. ($\tau \approx 12$ ps) In einigen Fällen, wie bei Os - 191 (Kop 82), trifft das nicht zu. Wegen der Änderung des Spins ($\Delta I \neq 0$) erhält man auch unter Bedingungen des thermischen Gleichgewichts Relaxationseffekte. Zur Messung der Kernspingitterrelaxationszeiten im μ sec -Bereich nach diesem Verfahren steht unseres Wissens kein Isotop zur Verfügung. (evtl. ^{57}Co , $\tau \approx 100$ ns).

Wie jede Experimentiertechnik aus dem Gebiet der Hyperfeinphysik läßt sich auch die Tieftemperatur-Kernorientierung zur Untersuchung von sowohl kernphysikalischen als auch Festkörpereigenschaften einsetzen. Im Bereich der Festkörpereigenschaften (V_{zz} , B_{Hyp} , K , C_K) bietet sie die Möglichkeit, mit kleinsten Konzentrationen ($c \ll 1$ ppm) bei einer Vielzahl von Isotopen anwendbar zu sein. Nachteile sind, daß die Struktur der Hyperfeinaufspaltung nicht aufgelöst werden kann. Ein Test, ob die angenommene Hyperfeinstruktur auch wirklich vorliegt, ist jedoch durch Messung über einen größeren Temperaturbereich möglich. Weiterhin nachteilig ist die relativ geringe Genauigkeit (einige %), die im wesentlichen durch die Fehler bei der Bestimmung der Intensität der γ -Strahlung (≈ 0.1 %) bedingt sind. (Mit Ausnahme der NMR - ON, siehe (NO 83)).

2.2. Die statische Wechselwirkung - das Hyperfeinfeld

Das Verständnis und schließlich die theoretische Berechnung der Hyperfeinfelder ist kein einfaches physikalisches Problem und Gegenstand vieler theoretischer Arbeiten. Obwohl die Größenordnung der Magnetfelder (bis ca 100 T) weit über den im Labor herstellbaren Werten liegt, sind sie doch Ergebnisse von kleinen Veränderungen der Elektronen-Wellenfunktionen, so daß einfache Modelle meist keine Hyperfeinfelder liefern. Die Berechnung der Hyperfeinfelder erfordert daher eine sehr genaue Berücksichtigung der Wechselwirkung der einzelnen Elektronenschalen untereinander: Sie erfordert einerseits eine geschickte Lösung des Vielkörperproblems, ist damit aber auch ein empfindlicher Test der benutzten Modelle.

Für Isolatoren läßt sich die Wechselwirkungsenergie nach der Formel von Abragam und Pryce (ABR 51) wie folgt angeben:

$$\begin{aligned}
 H = & g_N \mu_N B I + g_1 \mu_B B_z S_z + g_1 \mu_B [B_x S_x + B_y S_y] \\
 & + A' S_z I_z + B' [S_x I_x + S_y I_y] + D [S_z^2 - \frac{1}{3} S(S+1)] \\
 & + P [I_z^2 - \frac{1}{3} I(I+1)]
 \end{aligned}$$

B = externes Magnetfeld

A', B' = Konstanten

D, P = Konstanten

Der erste ist der schon erwähnte "Brute Force"-Term, Die Terme 2,3,4,5, enthalten die Wechselwirkung des elektronischen Momentes mit dem externen Magnetfeld sowie zwischen dem Kernspin I und dem elektrischen Spin S. Der Term 6 berücksichtigt Anisotropie-Effekte der Elektronenschale infolge von Kristallfeldern, der 7. Term die Wechselwirkung des Kernquadrupolmomentes mit evtl. elektrischen Feldgradienten.

Wegen der atom-weisen Betrachtung eignet sich dieser Ansatz nicht für die Anwendung auf metallische Systeme, für die ja das kollektive Verhalten der Leitungselektronen charakteristisch ist. Der übliche Ansatz ist hier, daß nur der "Brute Force"-Term (der 1.Term) berücksichtigt wird, statt des externen Feldes wird ein sogenanntes "effektives Feld" B_{eff} verwendet, das die anderen Wechselwirkungen enthält.
($B_{\text{eff}} = B_{\text{ext}} + B_{\text{Hyp}}$)

Der nächste Schritt ist die Berechnung der Beiträge eines Elektrons (Vgl. FLO 78, S.690) zum Hyperfeinfeld. Es werden dabei drei Beiträge unterschieden: Das "Orbital-Feld" auf Grund des Bahndrehimpulses eines Elektrons, das "Spin-Dipolar"-Feld auf Grund des Eigendrehimpulses eines Elektrons und das "Fermi-Kontakt"-Feld, das entsteht auf Grund der unterschiedlichen Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der s-Elektronen mit unterschiedlicher Spinrichtung am Kernort.

Das "Fermi-Kontakt"-Feld beträgt (zit.nach FLO 78,S.690)

$$B_{\text{cp}} = \frac{8}{3} \pi g \mu_B S \sum_n [\psi_{n,\sigma}^2(0) - \psi_{n,-\sigma}^2(0)]$$

Dabei sind $\psi_{n,\sigma}^2$ und $\psi_{n,-\sigma}^2$ die s-Elektronendichten am Kernort mit jeweils unterschiedlichem Spin.

Atommodelle zur Berechnung der Hyperfeinfelder benötigen also spin-abhängige Radialwellenfunktionen, die jedoch -über ein größeres Volumen gemittelt- wieder spinunabhängig sein können.

Zur Klärung der Ursache des Unterschieds in der Spindichte werden -systemabhängig- im wesentlichen die folgenden Mechanismen angesehen: (Vgl. FRE 65)

An Gastatomen, ohne innere nicht abgeschlossene Schale, in ferromagnetischen Wirtsgittern entsteht das Hyperfeinfeld durch sog. Leitungselektronenpolarisation (CEP).

Dabei wird angenommen, daß die Leitungselektronen durch eine s-d Austauschwechselwirkung polarisiert werden.

Bei Verunreinigungsatomen mit eigenem 3d- Moment (oder 4f- Moment) - wie dem hier benutzten ⁵⁴Mn - ist jedoch ein anderer Mechanismus dominant, der als "Core polarization" bezeichnet wird.

Dabei wird angenommen, daß durch eine s-d Austauschwechselwirkung innerhalb des Gastatoms die inneren s-Schalen polarisiert werden. Dadurch entstehen auch größere Hyperfeinfelder in Nicht-Ferromagneten.

Auf die Hyperfeinfelder der hier untersuchten Systemklasse (Systeme mit Lokalen Momenten in Nichtferromagneten) soll im übernächsten Abschnitt genauer eingegangen werden; zunächst soll im nächsten Abschnitt näher auf die Bestimmung der Kernspingitterrelaxationszeiten eingegangen werden.

2.3. Die dynamische Hyperfeinwechselwirkung - Relaxationszeit und Korringakonstante

Bestimmungen der Kernspingitterrelaxationszeit sind vorwiegend aus NMR-Messungen bekannt. Die Temperaturabhängigkeit kann hier in einfacher Weise durch das sog. Korringa-Gesetz beschrieben werden,

$$T_1 T_L = c_K$$

T_1 = Kernspingitterrelaxationszeit
 T_L = Gittertemperatur
 c_K = Korringakonstante

wodurch die Relaxation durch eine temperaturunabhängige Größe beschrieben wird.

Dies läßt sich jedoch auf Messungen durch NO nicht ohne weiteres anwenden. Wichtig ist in diesem Zusammenhang die sog. "Wechselwirkungstemperatur" T_{int} , die wie folgt definiert ist:

$\Delta E = k_B T_{int}$, wobei ΔE die Aufspaltungsenergie der Hyperfeinniveaus ist.

T_{int} ist ein Maß dafür, ob die Besetzung der Hyperfeinniveaus im thermischen Gleichgewicht als näherungsweise gleich angesehen werden kann. Für die Tieftemperaturkernorientierung ist typisch, daß T_{int} und T_L zur Erzielung eines genügend großen Effektes von der gleichen Größenordnung sind. Die oben erwähnte Korringa-Formel gilt aber nur für $T_L \gg T_{int}$.

Konsequenzen dieser Tatsache, nämlich daß die Meßtemperatur unter der Wechselwirkungstemperatur liegen kann, sind folgende:

- 1) Die gemessene Relaxationskurve ist im allgemeinen keine einfache e-Funktion mehr, sondern besteht aus einer Summe von e-Funktionen, entsprechend der Zahl der Hyperfeinniveaus; die Angabe eines T_1 , d.h. eines einzigen Parameters, der eine

einfache e-Funktion beschreibt, ist nicht mehr sinnvoll.

- 2) Die Relaxationszeiten von einer niedrigen zu einer höheren Temperatur und umgekehrt sind nicht gleich, da im allgemeinen die Bedingung $\Delta T \ll T$ nicht erfüllt ist.
- 3) Für Temperaturen $T < T_{\text{int}}$ wird die Relaxationszeit temperatur-unabhängig. (Zuerst gezeigt von BRE 68)
- 4) Eine Umrechnung der γ -Anisotropie-Werte in Temperaturen ist im allgemeinen nicht sinnvoll, wenn das System nicht im thermischen Gleichgewicht ist.

Wie im folgenden noch gezeigt wird, läßt sich die n-fache Exponentialfunktion, der die Relaxation für $T < T_{\text{int}}$ folgt, berechnen und mit einem Parameter, der Korringakonstanten, an die experimentellen Kurven anpassen.

Ein vereinfachtes Verfahren kann hier zu erheblichen Fehlern führen :

Entnimmt man der experimentellen Kurve ein T_1 , indem man die Zeit bestimmt, nachder die Störung des Systems - hier die Änderung der γ -Anisotropie - auf den Wert $1/e$ abgeklungen ist, - ohne Rücksicht darauf, ob die Relaxationskurve eine e-Funktion ist - und benutzt dann das Korringagesetz, erhält man Werte für die Korringakonstanten, die bis zu einer Größenordnung abweichen können. Leider ist es auch nicht möglich, die Abweichung vom Korringagesetz allgemein anzugeben, da in die Berechnung der erwähnten Multiexponentialfunktion das Temperaturverhältnis von Anfangs- und Endtemperatur der Relaxation (T_i, T_f) entscheidend eingeht und bei NO-Messungen dieses typischerweise $T_i : T_f = 1:2$ betragen kann (gegenüber $T_i : T_f \approx 1$ im Hochtemperaturfall). Dieser Fehler wäre jedoch noch als klein bei den hier untersuchten Systemen zu betrachten, da die theoretischen Abschätzungen um noch mehr Größenordnungen voneinander abweichen.

Bei vielen Problemen ist auch oft nur die Kenntnis der Grö-

Benordnung von T_1 ausreichend.

Nur für eine systematische Untersuchung der c_K ist eine genaue Berechnung natürlich unverzichtbar.

Es sei vorher noch erwähnt, daß eine Voraussetzung zur Anpassung der Multiexponentialfunktion mit nur einem einzigen Parameter ist, daß der Ausgangszustand, bei dem die Relaxation beginnt, bekannt ist. Dies ist im allgemeinen nur der Fall, wenn die Relaxation von einem thermischen Gleichgewicht aus startet. Dies ist ein besonderer Vorteil der hier benutzten Temperatursprung-Methoden gegenüber anderen Methoden, basierend auf NMR-ON.

Das benutzte Verfahren zur Bestimmung von c_K soll im folgenden kurz dargestellt werden. Eingehendere Beschreibungen finden sich in den Artikeln KLE 83, KOP 82, BRE 68a.

Zunächst werden die Übergangswahrscheinlichkeiten innerhalb der Hyperfeinniveaus berechnet. Nach Slichter (SLI 63, S. 124) sind diese:

$$W_{mks, nk's'} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle mks | V | nk's' \rangle|^2 \cdot \delta(E_m + E_{ks} - E_n - E_{k's'})$$

Um W_{mn} zu erhalten, muß über k und s wie folgt summiert werden:

$$W_{mn} = \sum_{k,s} W_{mks, nk's'} \quad \text{mit } k, s \text{ besetzt und } k', s' \text{ unbesetzt.}$$

Die Besetzungswahrscheinlichkeiten für k und s erhält man aus der Fermiverteilung für die Leitungselektronen:

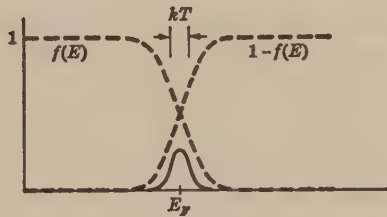
$$f(E) = (e^{(E-E_F)/kT} + 1)^{-1}$$

Die W_{mn} werden dann wie folgt berechnet :

$$W_{mn} = \sum_{k,s,k',s'} W_{mks,nk's'} f(E_{ks}) \cdot (1 - f(E_{k's'}))$$

D.h. nur die Elektronen mit Energie nahe der Fermikante können Energie aufnehmen oder abgeben und damit zur Relaxation beitragen. Siehe dazu auch die folgende Abbildung aus (SLI 63, S.124).

FIG. 5.3. Functions of $f(E)$, $1 - f(E)$, and $f(E)[1 - f(E)]$. The solid line shows $f(E) \times [1 - f(E)]$.



Dieser Term enthält die eigentliche Temperaturabhängigkeit.

Damit kann die Matrix W_{mn} durch Ausrechnen des Kernmatrixelementes berechnet werden, sie kann in der Form

$W_{mn} = k W_{mn}^{\sim}$ dargestellt werden, mit

$$k = \frac{h}{2\pi} \frac{v}{k_B c_K} \frac{1}{1-Q} \quad \text{mit } Q = e^{-\Delta E/kT}$$

wobei ΔE die Energie der Hyperfeinaufspaltung ist.

Die Matrix $W_{mn}^{\sim}$ ist (wegen der Auswahlregeln) tridiagonal und hängt nur von dem Kernspin I und Q ab.

Der einzige zu fittende Parameter c_K befindet sich im vorgezogenen Faktor k .

Mit Hilfe der Matrix W_{mn} kann dann die sogenannte Raten-
gleichung aufgestellt werden.

$$\dot{\rho}_n = \sum_m (W_{mn} \rho_m - W_{nm} \rho_n)$$

ρ_n = Besetzung des n-ten Hyperfeinniveaus.

Die Lösung dieser Gleichung ist einfach nur in den folgenden
zwei Fällen, die hier jedoch nicht zutreffen:

- 1) Wenn eine sogenannte Spintemperatur existiert, gilt für
die ρ_n zu jedem Zeitpunkt eine Boltzmannverteilung.
Voraussetzung dafür ist, daß die Kopplung der Kernspins,
gewöhnlich charakterisiert durch die transversale
Relaxationszeit T_2 , genügend stark ist ($T_1 \gg T_2$).
Wegen der kurzen T_1 -Zeiten hier und der geringen Kon-
zentrationen ist dies jedoch nicht anzunehmen.
- 2) Wenn $T_L \gg T_{int}$ (T_L = Gittertemperatur) gilt, kann
 $\rho_n \hat{=} \rho_n$ (für alle n) angenommen werden.

In dem hier vorliegenden Fall muß die Ratengleichung gelöst
werden. Dies ist möglich, wenn die Anfangswerte der ρ_n vor
der Relaxation -wie hier - bekannt sind.

Weitere Abhandlungen dieses umfangreichen Problems wurden
von Gabriel (GAB 69), Barclay (BAR 71 b), Hartmann-
Boutron und Spanjaard (HAR 72), Bacon et al. (BAC 72 b) und
Turrel (TUR 80) veröffentlicht.

Trotz dieses umfangreichen -und hier nur grob zu beschreibenden-
Verfahrens zur Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit
von T_1 ändert sich das eigentliche physikalische Problem
nicht; die Relaxation wird weiterhin durch einen Parameter,

die Korringakonstante, beschrieben. Es sind auch keine zusätzlichen Annahmen zur Berechnung von c_K nötig.

2.4. Systeme mit Lokalen Momenten

2.4.1. Bedingungen für das Auftreten Lokaler Momente, Eigenschaften dieser Systeme

Die Beschreibung magnetischer Verunreinigungen in nicht-ferromagnetischen Metallen stellt ein nicht geringes theoretisches Problem dar, da eine Fülle unterschiedlicher experimenteller Effekte damit verbunden ist. Trotz einer Vielzahl von Versuchen existiert noch keine Theorie, die die Gesamtheit der Erscheinungen befriedigend erklärt. (RAD 73) Üblicherweise wird dieses Gebiet in zwei Problemkreise unterteilt.

Der eine behandelt die Frage, unter welchen Bedingungen eine magnetische Verunreinigung, d.h. ein Atom mit nicht abgeschlossener innerer 3d- oder 4f-Schale, sein Moment behält oder verliert. Es ist bekannt, daß im ersten Fall die Eigenschaften der Legierung sich sehr viel stärker im allgemeinen ändern, als wenn das magnetische Moment durch die Wechselwirkung mit den Leitungselektronen "gelöscht" wird. In diesem Zusammenhang sei darauf hingewiesen, daß der Ausdruck "Bildung von Lokalen Momenten" irreführend ist. Nach einem Vorschlag von (WOH 73) ist die Bezeichnung "Überleben des magnetischen Moments" passender.

Der andere Problemkreis beschäftigt sich mit den Eigenschaften dieser Systeme. Dabei werden wieder zwei Gruppen unterschieden. Im Fall kleinster Verunreinigungskonzentrationen (dilute limit) möchte man die Wechselwirkung der Leitungselektronen mit dem magnetischen Moment verfolgen.

Hier sind die experimentellen Phänomene, die im Zusammenhang mit dem Kondoeffekt bekannt sind, zu nennen, bekanntlich bis vor einigen Jahren ein Gebiet intensiver Forschungsanstrengungen.

Im Falle höherer Konzentrationen treten die Wechselwirkungen der Verunreinigungen stärker hervor und bestimmen die physikalischen Eigenschaften des Systems. Besonders entscheidend war dabei die Entdeckung, daß die Wechselwirkung der Ver-

unreinigungen untereinander durch die Leitungselektronen vermittelt werden (RKKY-Wechselwirkung). Auf Grund dessen wurde eine nicht unbeträchtliche Aktivität auf dem Gebiet der sogenannten Spingläser ausgelöst.

Die ersten Ansätze zur Berechnung der Wechselwirkung einer magnetischen Verunreinigung mit den Leitungselektronen gehen auf Zener (ZEN 51, vgl BRE 83 und BLA 73) zurück, der einen Hamiltonoperator der folgenden Form benutzte:

$$\hat{H} = J_{sd} \hat{S} \cdot \hat{s} \quad \left(\begin{array}{l} \hat{S} = \text{Spin des Verunreinigungsatoms} \\ \hat{s} = \text{Spin der Leitungselektronen} \end{array} \right)$$

Die ersten Versuche, vorherzusagen, ob die 3d-Verunreinigungen in normalen Metallen magnetisch sind oder nicht, wurden durch Blandin und Friedel (BLA 59) mit dem sogenannten Friedel-Modell gemacht. Die Grundzüge dieser Theorie sollen kurz skizziert werden. Zunächst wird angenommen, daß das 3d-Orbital, -da seine Energie nahe dem Leitungsband liegt-, durch die Wechselwirkung mit den Leitungselektronen seine magnetischen Eigenschaften verliert, was auch bei den meisten Systemen der Fall ist. Die Theorie behandelt dann das Streuproblem der Leitungselektronen an dem verbliebenen Atomrumpf der Verunreinigung, der ein bestimmtes Störpotential besitzt.

Unter bestimmten Bedingungen existieren an den Verunreinigungen sogenannte "virtual bound states", d.h. Leitungselektronen können zeitweise die d-Orbitale der Verunreinigung besetzen, und bedingen damit die magnetischen Eigenschaften des Systems.

Im Anderson Modell werden dagegen die Wechselwirkungen (Vgl. AND 61, BLA 73) gemäß folgendem Hamiltonoperator berücksichtigt:

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{Band}} + \hat{H}_d + \hat{H}_{sd}.$$

$\hat{H}_{\text{Band}}$ ist der Hamiltonoperator, der das Leitungsband der ungestörten Matrix beschreibt,

H_d beschreibt die Energieniveaus der Verunreinigung und ist von der einfachen Form:

$$H_d = E(n_{d+}, n_{d-}) + U(n_{d+}, n_{d-})$$

$U(n, m)$ ist dabei die Energie der Coulombabstoßung, die auftritt, wenn ein Orbital doppelt (mit spin up- und spin down-Elektron) besetzt ist;

H_{sd} beschreibt die Wechselwirkung beider Teilsysteme.

Sowohl aus dem Anderson- als auch aus dem Friedel-Modell lassen sich mit wenigen Parametern relativ einfache Kriterien ableiten, die vorhersagen, ob eine Verunreinigung magnetisch sein wird oder nicht; es ist jedoch kaum möglich, die Modellparameter experimentell zu untersuchen.

Ein weiteres Modell zur Erklärung des Auftretens lokaler Momente wurde von Hirst (HIR 70, HIR 71, HIR 74 vgl. BRE83) entwickelt.

Hier wird versucht, zuerst das Verunreinigungsion richtig zu beschreiben, einschließlich des Einflusses der Nachbar-Wirtsatome. Die Wechselwirkung mit dem Leitungsband wird dann als Störung behandelt. Dies Modell wird mehr dem komplizierteren Aufbau der 4f-Verunreinigungen gerecht. Wahrscheinlich ist es so, daß die Modelle von Anderson und Friedel einerseits und das Modell von Hirst andererseits Grenzfälle eines Problems betrachten, daß genauer nicht lösbar ist.

Eine der wichtigsten Eigenschaften dieser Systeme ist das Auftreten der langreichweitigen oszillierenden sog. RKKY-Wechselwirkung (RUD 54).

Danach wird die abweichende Ladung der Verunreinigung im Nahbereich (≈ 1 Atomradius) abgeschirmt, die Dichte $\rho(r)$ der gestreuten Elektronen oszilliert jedoch um die Verunreinigung herum, in der Form :

$$\rho(r) \sim r \cdot \cos(kr + \phi)$$

(k = Wellenzahl der Leitungselektronen, ϕ = Phase), sodaß eine in Größe und Vorzeichen mit dem Abstand oszillierende Wechselwirkung besteht, die für das Verhalten der Spingläser entscheidend ist.

Empirisch wichtig sind jedoch zwei Gruppen von Systemen mit Lokalen Momenten. Einige Verunreinigungen, z.B. Mn, haben in vielen, auch in einfacheren Wirtsmetallen ein Lokales Moment, die Ursache für das Lokale Moment kann mehr der Verunreinigung zugeschrieben werden. Hierfür sind die hier untersuchten Systeme Mn-Cu, Mn-Ag, Mn-Au, typische Vertreter.

Eine zweite Gruppe sind die Systeme, bei denen man die Ursachen für die Bildung der Lokalen Momente mehr den Eigenschaften des Wirtsmetals zugeschrieben wird. So zeigen z.B. in Pd sehr viel mehr Verunreinigungen ein Lokales Moment (Problem der "Giant moments"), aufgrund des d-Charakters der Leitungselektronen bei 4d- und 5d-Wirtsmetallen. (Typische Systeme Fe-Pd, Fe-Pt, Co-Pd).

Diese Systeme wären eine weitere interessante Stoffklasse für die hier durchgeführten Relaxationsmessungen.

Die Eigenschaften dieser Systeme umfassen, wie schon erwähnt, eine Vielzahl experimenteller Effekte, die im Falle kleinster Konzentrationen im Zusammenhang mit dem Kondoeffekt bekannt sind und im Fall hoher Konzentrationen als Eigenschaften der Spinglas-Systeme bekannt sind. Im folgenden soll auf die Hyperfeinwechselwirkungen -besonders der Tieftemperaturkernorientierung- an diesen Systemen eingegangen werden.

2.4.2. Statische Hyperfeinwechselwirkungen an den Lokalen Momenten.

Review-Artikel über die Hyperfeinfeldsystematik sind erschienen von Flouquet (FLO 78), eine weitere Übersicht wird sich in Ref. NO 83 von Brewer befinden.

Durch die Tieftemperaturkernorientierung erhält man nun folgende Informationen.

Relativ einfach läßt sich der Sättigungswert des Hypereinfeldes erhalten, auch selbst einfach als Hyperfeinfeld bezeichnet, das in vielen Fällen schon bei einem externen Feld von 0.1 T erreicht ist.

Aus Magnetisierungsmessungen läßt sich für den interessierenden Feldbereich das magnetische Moment bestimmen.

Es zeigt sich, daß für die 3d- Reihe in den sogenannten normalen Metallen der Wert B_{Hyp} / μ nahezu konstant ist. Der Wert variiert für ein Verunreinigungsatom in verschiedenen Wirtsmetallen wenig und liegt bei Mn-54 bei $7 \text{ T} / \mu_B$.

Aber auch auf andere Verunreinigungen ausgedehnt ergibt sich eine bemerkenswerte Übereinstimmung. Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem schon erwähnten Modell zur Entstehung der Hyperfeinfelder über die s-d Austauschwechselwirkung und "Core-polarization" bei den 3d-Elementen.

In den meisten Fällen kann auch das Vorzeichen des Hyperfeinfeldes durch Variation des externen Feldes im Sättigungsbereich des Hyperfeinfeldes bestimmt werden .

Weitere Information kann aus Messungen des Hyperfeinfeldes über einen großen Temperaturbereich gewonnen werden.

Kann man ausschließen, daß die Verunreinigungen auf verschiedenen Gitterplätzen sich befinden und damit eine Verteilung von Hyperfeinfeldern vorliegt, erhält man - sofern das Hyperfeinfeld temperaturabhängig erscheint - Informationen über die Wechselwirkung der Verunreinigungsatome untereinander. Eine Messreihe an Mn $\underline{\text{Ag}}$ ist in Ref.

SAN 78 enthalten. In diesem Fall sind die Verunreinigungen nicht vollständig parallel zum externen Feld ausgerichtet und führen im allgemeinen zu einer Abschwächung des NO-Effektes. (siehe auch KET 83)

Weitere Informationen kann man noch aus dem Bereich des externen Feldes, in dem das Hyperfeinfeld seinen Sättigungswert noch nicht erreicht hat, gewonnen werden, im folgenden kurz als Magnetisierungskurve bezeichnet.

Die Form der Kurve läßt sich zum Beispiel für ein freies paramagnetisches Verunreinigungsatom berechnen und mit der gemessenen Kurve vergleichen. Dieses Verhalten wird jedoch kaum beobachtet. Man muß daher davon ausgehen, daß das Lokale Moment feldabhängig ist, wie im Fall der "giant moments", oder - wie im folgenden ausgeführt - die Verunreinigung und ihre Wechselwirkung näher betrachten; es sind dies die Hyperfeinkopplung des Lokalen Momentes mit dem Kernspin und die Kopplung des Lokalen Momentes mit den Leitungselektronen, d.h. der Kondoeffekt.

Je nachdem welche Kopplung überwiegt werden drei Fälle unterschieden. Aus dem Sättigungswert des Hyperfeinfeldes kann die Kopplungskonstante der Hyperfeinwechselwirkung wie folgt berechnet werden.

$$g \mu_N B_{\text{Hyp}} \cdot I = A \vec{I} \cdot \vec{S} \quad \text{mit}$$

$$A \cdot S = g \mu_N B_{\text{Hyp}} \quad (\text{Vgl. FLO 78})$$

oder mit dem Begriff der "Wechselwirkungstemperatur"

$$k_B \cdot T_{\text{int}} = g \mu_N B_{\text{eff}} :$$

$$A \cdot S = k_B T_{\text{int}}$$

Der Fall der starken Kondokopplung

Hierbei ist $A \ll k_B T_K$ (T_K =Kondotemperatur) oder $T_{int} \ll T_K$. Da bei NO-Messungen meist gilt $T \approx T_{int}$ (T = Meßtemperatur), folgt daraus auch $T \ll T_K$.

Diese Systeme zeichnen sich dadurch aus, daß der Sättigungswert des Hyperfeinfeldes erst bei höheren Feldern (um 1 Tesla) erreicht wird. Bei einigen reichen die im Labor herstellbaren Felder nicht mehr aus, um die Sättigung zu erreichen.

Der Übergang zu den BFO-Systemen ("Brute Force"-Systemen mit $A \approx 0$) ist fließend. Für die Magnetisierungskurve gilt, daß das effektive Magnetfeld der Magnetisierungskurve proportional ist. Aus der Anfangssteigung läßt sich das magnetische Moment der Verunreinigung bestimmen, jedoch reicht für eine Auswertung der Anfangssteigung die Genauigkeit der NO im allgemeinen nicht aus.

Der Fall der schwachen Kondokopplung

Hier ist $A \gg k_B T_K$ bzw. $T_{int} \gg T_K$.

Der Temperaturbereich der NO-Messung kann hier von $T > T_K$ bis $T < T_K$ reichen.

Bei diesen Systemen genügen kleine Felder (0.05 - 0.2 mT), um den zwei bis drei Größenordnungen höheren Sättigungswert des Hyperfeinfeldes zu erreichen.

Die Interpretation der Magnetisierungskurve ist hier schwieriger, da die Spins I und S zunächst zu einem Gesamtdrehimpuls koppeln, diese Kopplung wird beim Anlegen des externen Feldes aufgebrochen. Die Magnetisierungskurve (Vgl. FLO 78) kann für verschiedene Spins des Lokalen Momentes und g-Faktoren bei bekanntem B_{Hyp} berechnet werden. Die Empfindlichkeit der NO-Messung reicht im allgemeinen für eine sichere Unterscheidung und Auswahl der Parameter S und g aus.

Der Fall der mittleren Kondo-Kopplung

In diesem Fall ist $A \approx k_B T_K$ bzw. $k_B T_{\text{int}} \approx A \cdot S$ und damit gilt für die Meßtemperatur $T \approx T_K$.

Für diesen Fall ist eine Berechnung der Magnetisierungskurve nicht mehr möglich; nur grobe Abschätzungen entsprechend den anderen Fällen sind möglich. Ein grobes Modell wurde von Benoit (siehe FLO 78) entwickelt.

Einordnung der untersuchten Systeme

Eine Systematik der Kondotemperaturen von 3d- Verunreinigungen in nichtmagnetischen Metallen ist in Referenz (GRU 78) enthalten. Die Kondotemperaturen von MnCu und MnAu liegen zwischen 3 und 10 mK bzw. 1 und 3 mK.

Nach Brewer (BRE 83) sind die Kondotemperaturen auf Grund von NO-Messungen für MnCu, MnAg, MnAu 25(10) mK, 34(10) mK, ≈ 2.5 mK. (siehe auch DAY 73)

Die untersuchten Systeme liegen damit in dem Fall der schwachen bis mittleren Kondo-Kopplung.

Für die hier durchgeführten Messungen erscheint diese Klassifikation nicht so entscheidend, wie für die Interpretation der Magnetisierungskurve, da die Messungen hier in Magnetfeldern von 1 bis 5.4 T durchgeführt wurden.

Obwohl im Prinzip aus der Magnetisierungskurve auch Informationen über das dynamische Verhalten der Lokalen Momente erhältlich sind, erweist sich dieser Weg als recht schwierig. Dagegen bietet hier die Relaxationsmessung günstigere Aussichten, da sie im Sättigungsbereich des Hyperfeinfeldes durchgeführt werden kann.

2.4.3. Dynamische Hyperfeinwechselwirkungen an Lokalen Momenten

Wohl im Zusammenhang mit dem Mangel an experimentellen Daten existieren auch nur wenige Theorien über dieses Gebiet, die meisten Theorien behandeln ferromagnetische Systeme oder sonstige Systeme mit schwacher Hyperfeinwechselwirkung. Aus diesen läßt sich die Größenordnung der Relaxationszeit meist abschätzen. (KOR 50, NAR 73)

Berechnungen der Kernspingitterrelaxationszeiten für Systeme mit Lokalen Momenten sind enthalten in den Referenzen (SPA 72, HAR 75, SPA 73) von Spanjaard und Hartmann-Boutron.

Berechnungen für das System MnCu wurden von Walstedt und Narath (WAL 72) durchgeführt.

Einige Theorien behandeln nur die Relaxation der Lokalen Momente, d.h. des magnetischen Momentes der Atomhülle.

(Goetze und Schlottmann /GOE 74/).

Ein Vergleich mit experimentellen Daten ist hier möglich mit NMR-Messungen an den Verunreinigungsatomen benachbarten Cu-Atomen (über NMR-Satellitenlinien) (ALL 79b), oder mit Messungen durch Neutronenstreuung (MUR 81, LOE 76) oder mit ESR (BAB 80a).

Hierauf soll im späteren Kapitel "Diskussion" im einzelnen eingegangen werden.

3. Entwicklung eines experimentellen Verfahrens

3.0. Vorwort

Die Physik der Kernorientierung bietet im Prinzip drei Möglichkeiten zur Messung der Kernspingitterrelaxationszeiten:

Sie lassen sich aus dem sogenannten "Orientierungsparameter" $\mu \cdot B_{\text{eff}} / k_B T$ ableiten; dabei soll das Zeitverhalten der γ -Anisotropie nach einer schnellen Änderung einer der Größen beobachtet werden.

Eine Änderung des magnetischen Momentes μ müßte in einem geeigneten Zerfallsschema gefunden werden können, dabei müßte ein geeignetes Niveau mit einer Lebensdauer existieren, das in der Größenordnung der zu messenden T_1 liegt. Weiterhin müßte- da die Lebensdauern nicht beeinflussbar sind- das T_1 variierbar sein, um einen sicher interpretierbaren Meßeffect zu erhalten. Z.B. müßte die Magnetfeldabhängigkeit von T_1 bekannt sein. Ein Vorteil dieser Methode wäre, daß nicht mehr Meßzeit, als in einem sonst üblichen Kernorientierungsexperiment benötigt würde.

Es müßte lediglich der Kernorientierungseffekt in Abhängigkeit vom Magnetfeld bestimmt werden. Für den Fall $T_1 \approx \tau$ müßten sich "Umorientierungseffekte" nachweisen lassen.

Ist man auf die "klassischen" langlebigen Isotope (für Kernorientierung) angewiesen, ergeben sich hier unseres Wissens keine Möglichkeiten. (evtl. Co-57, 14.4 keV Niveau, $\tau = 100$ ns) Ähnlich sind die Situationen bei der Verwendung anderer Kernorientierungsmethoden, wie TDPAC o.ä..

Die Methode der "schellen Magnetfeldänderung" ist der Ausgangspunkt der hier beschriebenen Experimente gewesen und schien der einzig mögliche Weg zu sein. Bei der Analyse dieser Methode wurde dann eine Methode, auf einem Temperatursprung beruhend, gefunden, die dem Experimentator günstige Bedingungen bietet, während die Methode, die eine schnelle

Magnetfeldänderung benutzt, wegen der erheblichen experimentellen Probleme nicht weiter verfolgt wurde.

Es wurde schon erwähnt, daß die Methode NMR-ON hier nicht in Frage kommt, da es dabei darauf ankommt, einen großen Teil der Kerne durch resonante HF-Einstrahlung umorientiert zu halten. Wegen der kurzen T_1 , d.h. hohen Relaxationsrate, würde eine entsprechend hohe HF-Leistung benötigt. Der Artikel von Spanjaard et al. (SPA 73) behandelt dieses Problem.

Bevor die experimentellen Details näher besprochen werden sollen, soll noch auf den hohen experimentellen Aufwand hingewiesen werden, der zur Erzeugung der tiefen Temperaturen im Bereich von 20 mK nötig ist. In der weiteren Arbeit soll dann die Erzeugung tiefer Temperaturen nicht weiter behandelt, sondern einfach vorausgesetzt werden.

Die neueste Generation von $\text{He}^3\text{-He}^4$ -Mischkryostaten zeichnet sich dadurch aus, daß bei einigen ein Probenhalter ausgewechselt werden kann, ohne den Betrieb des Kreislaufs zu unterbrechen, oder doch wenigstens ohne den Kryostat über 4 K aufzuwärmen. Damit ist ein Probenwechsel innerhalb von Stunden möglich, aber man ist auch an einen speziellen Mechanismus zum Probenwechsel gebunden. Außerdem konnte die Kühlleistung mit Hilfe besserer Wärmetauscher erhöht werden.

Ein Kryostat mit diesen Möglichkeiten stand nicht zur Verfügung. Bei Änderungen an experimentellen Anordnungen mußte immer der Kryostat aufgewärmt und demontiert werden, sodaß ein Probenwechsel -oder Änderung eines experimentellen Details- in günstigen Fällen doch wenigstens 3-4 Tage in Anspruch nimmt. Schnelleres Aufwärmen und Abkühlen impliziert einen höheren Verbrauch an Kühlmitteln und die Gefahr der mechanischen Beschädigung des Kryostaten durch die thermische Ausdehnung und Kontraktion.

Daher war es erforderlich, bei der Entwicklung dieser neuen Meßmethode mit sehr wenigen Kaltfahrzyklen auszukommen.

Auch ist es nötig, um die volle Kühlleistung des Kryostaten auszunutzen, die Meßanordnung im Kryostaten auf das unbedingt Notwendige zu beschränken. Die Möglichkeiten sind begrenzt, etwa zu Kontrollzwecken zusätzliche Meßeinrichtungen einzubauen.

Damit wird auch eine systematische Fehlersuche stark eingeschränkt. Treten unvorhergesehene Fehler auf, kann nur der Kryostat aufgewärmt und demontiert werden.

Die Kontrollmöglichkeiten bei Raumtemperaturen sind aber wiederum sehr eingeschränkt. Einige Fehler, z.B. Lecks oder Berührungen von Teilen mit verschiedenen Betriebstemperaturen, treten teilweise nur bei Temperaturen auf, bei denen das Kryostatinnere nicht mehr zugänglich ist.

Um zu entscheiden, ob ein Experiment unter den gegebenen experimentellen Randbedingungen durchführbar ist, kam es darauf an, das experimentelle Problem einfach und mit den Grundparametern darzustellen, die unter den Bedingungen der Ultratieftemperaturtechnik auch meßbar sind. In dieser Weise sollen im folgenden zwei Meßverfahren und ihre Optimierung diskutiert werden.

3.1. Verfahren der schnellen Magnetfeldänderung

Grundidee dieses Verfahrens ist es, die Probe zusätzlich zum Polarisationsmagneten mit einer kleinen Zusatzspule zu umgeben, mit deren Hilfe das "externe Magnetfeld" (B_{ext}) erhöht oder erniedrigt werden kann. Die Selbstinduktion dieser Zusatzspule ist klein, sodaß dieses Zusatzfeld schnell- d.h. $\Delta t < T_1$ oder $\Delta t \approx 10 \mu\text{s}$ - mit geringem experimentellem Aufwand geschaltet werden kann.

Infolge dessen wird auch das effektive Feld (B_{eff}), geändert, sofern man noch nicht den Sättigungswert des des Hyperfeinfeldes erreicht hat.

Für bestimmte B_{ext} , ist die Änderung von B_{eff} sogar größer, als die Änderung von B_{ext} , sodaß man von einer Hyperfeinverstärkung sprechen kann. Dies soll im folgenden genauer ausgeführt werden.

Ein oft benutztes Kriterium für die Bestimmung der notwendigen Meßzeit in der Kernphysik ist, daß der Effekt mindestens gleich dem relativen statistischen Fehler sein soll:

$$\sqrt{N}^{-1} = \epsilon$$

wobei N = Anzahl der gemessenen Ereignisse und

$$\epsilon = \frac{|N - N_1|}{N} \quad \text{der sog. Effekt ist.}$$

N = Anzahl ohne Zusatzfeld, N_1 = mit Zusatzfeld

Es sei: t_K = Meßzeit, in der $\sqrt{N}^{-1}$ gleich ϵ wird, die "Kritische Meßzeit". Dann gilt:

$$\sqrt{N} t_K^{-1} = \epsilon \quad \Rightarrow \quad \dot{N} t_K \epsilon^2 = 1 \quad \Rightarrow \quad t_K^{-1} = \dot{N} \epsilon^2$$

Um bei den hier geplanten Experimenten eine auswertbare Messung zu erhalten, muß das Experiment jedoch 10 - 100 t_K dauern; d.h. t_K sollte $< 1 \text{ h}$ sein! (KET 77)

Die Berechnung des Kernorientierungseffektes infolge der Änderung des externen Feldes läßt sich einfach durchführen, wenn man von der sogenannten Hochtemperaturnäherung der NO ausgeht:

$$W(0) = 1 + K (B_{\text{eff}} / T)^2$$

T = Temperatur, K = spezifische Konstante für das Isotop Mn-54

Weiter sei $a \equiv W(0)$ und Δa die Änderung infolge des Zusatzfeldes. Dann ist $\epsilon = \frac{\Delta a}{a}$, näherungsweise gilt auch $\Delta a = \epsilon$, wenn $a \approx 1$.

Man berechne da/dB_{ext} .

$$\frac{da}{dB_{\text{ext}}} = - 2 K \frac{1}{T^2} B_{\text{eff}} \frac{dB_{\text{eff}}}{dB_{\text{ext}}}$$

Mit der obigen Gleichung ergibt sich: (mit $da \approx \Delta a = \epsilon$)

$$t_K^{-1} = N \cdot 4 K^2 T^{-4} (B_{\text{eff}} \cdot \frac{dB_{\text{eff}}}{dB_{\text{ext}}})^2 \Delta B_{\text{ext}}^2$$

Besonders erwähnt sei der Term $(B_{\text{eff}} \frac{dB_{\text{eff}}}{dB_{\text{ext}}})$, der

davon abhängt, in welchen Teilen der Magnetisierungskurve man mißt. $dB_{\text{eff}}/dB_{\text{ext}}$ ist die schon erwähnte "Hyperfeinverstärkung". Für gesättigtes B_{eff} ergibt sich

$$B_{\text{eff}} = B_{\text{Hyp}} + B_{\text{ext}}, \text{ also } dB_{\text{eff}} / dB_{\text{ext}} = 1.$$

Desgleichen gibt es bei "Brute Force"-Orientierung keine Hyperfeinverstärkung, hier gilt $B_{\text{eff}} = B_{\text{ext}}$.

Für das zuerst untersuchte System seien einige gemessene Werte aufgelistet. (MnCu mit $B_{\text{Hyp}} = - 28.0 \text{ T}$)

Tabelle 3.1.1

B_{ext}	$\text{dB}_{\text{eff}} / \text{dB}_{\text{ext}}$	B_{eff}
15 mT	320	10.0 T
30 mT	220	13.8 T
45 mT	178	17.2 T
60 mT	120	18.5 T
90 mT	82	22.5 T
120 mT	74	25.0 T

Die Verkürzung der Meßzeit durch die "Hyperfeinverstärkung" liegt also -da sie quadratisch eingeht- zwischen 4 - 5 Größenordnungen !

Trotzdem ergeben sich Probleme durch die Wirbelstromheizung, die nun diskutiert werden sollen.

Zunächst soll noch überlegt werden, ob es -bei gleicher Wirbelstromheizung- günstiger ist, große Feldänderungen bei kleiner Wiederholungsrate oder kleine Feldänderungen bei entsprechend hoher Pulsrate anzuwenden.

Es wird vorausgesetzt: $P_w \sim v A^2$

wobei:

v = Pulsrate; A = Pulsamplitude; P_w = Wirbelstromheizung

Ferner ist $\dot{N} \sim v$, $t_K^{-1} = \epsilon^2 \dot{N}$; für kleine Zusatzfelder gilt $A \sim \epsilon$, daraus folgt

$$t_K^{-1} \sim P_w.$$

Die benötigte Meßzeit ist also umgekehrt proportional der Wirbelstromleistung, die der Kryostat verkraften kann. Ein Meßzeitgewinn durch Optimierung von Pulsamplitude und Pulsrate ist nicht zu erzielen.

Das Ziel ist es nun, die Probe in der Geometrie herzustellen, bei der nur eine geringe Wirbelstromheizung entsteht. Zunächst wird man versuchen, die Probe in Form dünner Folien herzustellen, wie sonst in der Technik auch üblich. Bei unseren Versuchen zeigte sich, daß mit Foliendicken von $12\text{ }\mu\text{m}$ noch kein erfolgreiches Experiment durchzuführen war. Eine wahrscheinliche Ursache dafür ist, daß die Verringerung der Wirbelstromheizung durch Verringerung der Foliendicke nicht den theoretisch möglichen Wert erreichte, da räumliche Fehlorientierung -die Folie steht nicht senkrecht zum Magnetfeld- und Inhomogenität des Magnetfeldes immer mehr ins Gewicht fallen. Auch der Skineffekt könnte hier noch diskutiert werden. Er würde bei dicken Proben wegen geringerer Eindringtiefe eine geringere Wirbelstromleistung ergeben. Daher müßte unseres Erachtens eine Probe in Form dünner Drähte verwendet werden. Dadurch ergeben sich aber bei der Präparation der Probe zusätzliche Schwierigkeiten, insbesondere müßten die Drähte nach der Präparation mit einer Isolierschicht versehen werden !

Eine weitere Verbesserungsmöglichkeit besteht darin, hochfrequente Komponenten bei der Modulation von B_{ext} zu vermeiden. Jedoch erscheint es ungünstig, die Anstiegsflanken länger als $1/3\text{ }T_1$ zu machen. (T_1 angenommene Kernspingitterrelaxationszeit $> 10\text{ }\mu\text{sec}$.)

Wählt man die Pulslänge bis zu $3\text{ }T_1$, erhält man eine Pulsfrequenz von $16,6\text{ kHz}$. Damit sind schon die 3. und 5. Oberwelle in der Größenordnung von T_1^{-1} .

Aus diesen Gründen scheint auch eine sinusförmige Modulation günstig. In der Tat erweist sich -wie noch zu zeigen ist- diese Methode als günstiger, da sie mit viel geringeren Frequenzen auskommt. ($\nu = 0.05\text{ }T_1^{-1}$)

Weiterhin können bei dieser Methode einige thermische Effekte an Probe und Kühlfinger berechnet werden, da bei der Sinusmodulation die Annahme des thermischen Fließgleichgewichtes sinnvoll ist. Dies ermöglicht nun auch eine Ab-

schätzung mit Hilfe weniger experimenteller Daten, bei welcher Probenform das beabsichtigte Experiment nicht mehr am Problem der Wirbelstromheizung scheitert.

Die Berechnung des T_1 bei der Sinusmodulation von B_{ext} kann folgendermaßen geschehen. Es wird angenommen, daß die γ -Anisotropie infolge des T_1 mit einer einfachen e-Funktion relaxieren würde, (zum Problem dieser Näherung siehe Kapitel 2), daß also folgende Differentialgleichung gilt:

$$\dot{a}(t) \cdot T_1 = a_0(t) - a(t)$$

$a(t)$ = Anisotropie; $a_0(t)$ = Anisotropie für $T_1 \rightarrow 0$
Dies entspricht der Differentialgleichung eines einfachen RC-Gliedes, wobei Widerstand und Kapazität in Serie an eine Spannungsquelle mit der Spannung $U_0(t)$ angeschlossen sind, für die die bekannte Differentialgleichung gilt:

$$\dot{U}_C(t) R C = U_0(t) - U_C(t)$$

$U_0(t)$ sei nun sinusmoduliert, sodaß gilt $U_0(t) = U_0 \sin \omega t$.

Wegen der mathematischen Äquivalenz lassen sich die bekannten Lösungen übertragen.

Man erwartet daher, daß die Anisotropie $a(t)$ - wie $U_C(t)$ - auch sinusförmig moduliert erscheint, jedoch mit einer Phasenverschiebung ϕ .

$$\tan \phi = R C 2 \pi \nu$$

Da ϕ klein gewählt werden soll, gilt die Näherung $\phi \approx \tan \phi$.
Damit ergibt sich $\phi = R C 2 \pi \nu = T_1 2 \pi \nu$.

$\phi / 2 \pi \nu$ ist aber die Phasenverschiebung in Zeiteinheiten.
Wählt man $\nu = 0.05 T_1^{-1}$, ergibt sich für $T_1 = 10 \mu\text{sec}$ $\nu = 5 \text{ kHz}$.
Die Phasenverschiebung ist dann: $\tan \phi \approx 0.31$,
daraus folgt $\phi = 17,4^\circ$

Wird eine solche sinusmodulierte Kurve z.B. mit 128 Punkten aufgenommen, entspricht 1 Punkt 2.8° .

Diese Methode bietet also die Möglichkeit, mit relativ niedrigen Frequenzen zu messen und damit evtl. das Problem der Wirbelstromheizung zu lösen.

Um nun eine Abschätzung machen zu können, ob das vorgeschlagene Experiment durchführbar ist, benötigt man nun noch zwei Korrelationen, die durch Messung zu bestimmen sind.

Die erste ist die minimale Temperatur des Kryostaten in Abhängigkeit von der Wärmelast. Für den hier benutzten Kryostaten sind die Werte in der folgenden Tabelle angegeben.

Tabelle 3.1.2

P_w (μW)	I	T_{min} (mK)
0		16 (2)
0.5		19 (3)
1.0		23 (4)
4.0		30 (5)
10.0		50 (9)

Die zweite ist die Wirbelstromleistung in Abhängigkeit von der Frequenz der Sinusmodulation für eine Feldamplitude. Hierzu werden zwei Verfahren angewandt.

Einmal kann mit einem ungeeichten Widerstandsthermometer mit Hilfe der Mischkammerheizung die Leistung gefunden werden, die gerade der Erwärmung durch die Wirbelstromheizung entspricht.

Zum anderen kann die Wirbelstromheizung über die zuvor angegebene Funktion der Endtemperatur in Abhängigkeit von der Wärmelast ermittelt werden.

In der folgenden Tabelle sind die von uns empirisch ermittelten Werte für verschiedene Probenkonfigurationen angegeben.

Tabelle 3.1.3

Frequenz v (kHz)	Probe A P _w (μW)	Probe B P _w (μW)	Probe C P _w (μW)	Probe D P _w (μW)
0.3	-	-	< 0.5	< 0.05
1.0	62	-	0.5	0.05
3.0	160	1	5	0.5
10.0	300	5	50	5.5
30.0	800	20	-	-

Legende

- $\Delta B_{\text{ext}} = 3.5 \text{ mT}$ (Sinusmodulation $\Delta B = B_{\text{max}} - B_{\text{min}}$)
- Probe A Probe auf einem Cu - Blech aufgelötet.
(0.1 x 7 x 20 mm, übliches NO-Experiment)
- Probe B Probenfolie 12 μ am unteren Teil als MnCu präpariert, aktive Fläche 4.2 mm², kein weiteres Probenhalterblech
- Probe C Probe aus Cu-Draht, 5 Drähte a 0.3 mm
- Probe D Werte von Probe C, extrapoliert auf 50 Drähte a 0.1 mm

Es soll nun die erforderliche Meßzeit für ein Experiment mit Sinusmodulation berechnet werden.

$$\Delta a = -2 K T^{-2} B_{\text{eff}} (dB_{\text{eff}}/dB_{\text{ext}}) \Delta B_{\text{ext}}$$

K=(Konstante der Hochtemperaturnäherung für Mn-54)

$$K = 1.5 \cdot 10^{-7} (K / T)^2$$

$$T = 25 \text{ mK} , B_{\text{eff}} = 18.5 \text{ T} , (dB_{\text{eff}} / dB_{\text{ext}}) = 120$$

$$\Delta B = 3.5 \text{ mT}$$

$$\Delta a = 0.37 \%$$

Bei den gegebenen Geometrieverhältnissen (15cm Abstand) konnten mit einer 100 μCi -Quelle eine Zählrate von ca. 10 kHz erreicht werden. Die kritische Meßzeit beträgt dann bei 128 Kanälen Auflösung ca 1000 sec.

Dies entspricht bei einer Modulationsfrequenz von 3 kHz einer Zeitauflösung von 2.6 μsec pro Kanal.

Betrachtet man man also nur die Energiebilanz von Kühlleistung des Kryostaten und der Wirbelstromleistung, so ist die vorgeschlagene Messung bei spezieller Probenkonfiguration und der hohe Frequenzen vermeidenden Sinusmodulation wahrscheinlich noch durchführbar.

Zur Vermeidung hoher Wirbelstromleistungen kommen nur Probenkonfigurationen ohne zusätzlichen Wärmeleiter (d.h. Kühlfinger) in Frage. D.h. das Probenmaterial (z.B. Cu) muß zugleich Wärmeleiter und Probe sein, z.B. eine gefaltete Folie, die mit ihrem unteren Ende in die Modulationsspule reicht, und auch nur in diesem Teil dotiert ist. Wegen der schon erwähnten Probleme mit der räumlichen Orientierung ist außerdem ein Drahtbündel aus dünnen Drähten trotz der hiermit verbundenen präparativen Schwierigkeiten vorzuziehen.

Es treten aber noch zwei weitere Probleme auf, Probleme die auch dann auftraten, wenn ein Kryostat mit höherer oder gar unbegrenzter Kühlleistung zur Verfügung stünde, nämlich das der Wärmeleitung und das des dynamischen Temperaturverhaltens der Probe im Zeitbereich einiger Millisekunden.

Zum Problem der Wärmeleitung ist zu sagen, daß schon an dem Kühlfinger des Kryostaten (120 mm x 8 mm , Füllfaktor 0.75 , 0.1 mm Cu - Draht, Leitungskupfer) Temperaturdifferenzen

von 5 mK / μ W auftraten. Wegen der T^4 - Abhängigkeit der benötigten Meßzeit können sich daraus nicht unerhebliche Probleme ergeben.

Ein Vergleich mit Literaturwerten für die Wärmeleitfähigkeit von Cu ergibt zwar günstigere Werte, sofern reinstes und fehlstellenfreies Kupfer verwendet wird, jedoch wird durch Verwendung solchen Materials noch nicht das Problem der Wärmeleitwiderstände an den Übergängen bzw. Lötverbindungen gelöst. (vgl. LOU 74 S.274) Die Wärmeleitwiderstände an Grenzflächen stellen jedoch in der Tieftemperaturphysik unter 1 K ein nicht geringes Problem dar.

Da im übrigen die geometrische Anordnung der Probe durch die Forderung nach Vermeidung zu hoher Wirbelstromheizung schon festgelegt ist, bleibt für eine weitere Optimierung kein Spielraum übrig.

Aus diesen Gründen sollte die maximale Wärmelast noch um eine Größenordnung reduziert werden, d.h. 100 nW nicht überschreiten.

Das zweite Problem ist das der kurzzeitigen Temperaturspitzen in der Probe im Bereich einiger Millisekunden. Bei der zuvorgewählten Probenkonfiguration liegen die thermischen Zeitkonstanten im Bereich einiger Millisekunden. Das ist aber von der gleichen Größenordnung wie die Periodendauer der Modulation. Dadurch entsteht in der Probe auch eine Temperaturmodulation.

Diese tritt zwar bei der Methode der Sinusmodulation mit der doppelten Frequenz auf, und ist daher leicht erkennbar und korrigierbar; die mittlere Temperatur ist dadurch jedoch auch noch erhöht.

Zusammenfassend soll folgendes festgehalten werden.

Durch geeignete Probenkonfiguration kann erreicht werden, daß die Wirbelstromheizung ungefähr gleich der erlaubten Wärmelast des Kryostaten wird.

Um jedoch Temperaturdifferenzen an den Wärmeleitern und insbesondere an den Grenzflächen zu vermeiden, sollte die Wärmelast noch um eine Größenordnung reduziert werden.

An der Probe selber tritt noch eine Temperaturmodulation auf, die noch eine höhere mittlere Temperatur zur Folge hat und damit die notwendige Meßzeit verlängert.

Aus diesen drei Gründen konnte mit dieser Methode keine T_1 -Messung durchgeführt werden.

Die hierzu durchgeführten Überlegungen tragen jedoch entscheidend bei zum Gelingen der Methode des schnellen Temperatursprungs bei, die im folgenden Abschnitt behandelt werden soll.

Die experimentellen Möglichkeiten sind hier entscheidend besser. Insbesondere ist diese Methode nicht auf einen engen Bereich für B_{ext} begrenzt.

Hierbei wird gezeigt werden, daß die oben ausgeführten experimentellen Probleme, -der begrenzten Kühlleistung, der unzureichenden Wärmeleitung und der thermischen Zeitkonstanten der Probe,- sich mit dieser Methode in fast idealer Weise lösen lassen.

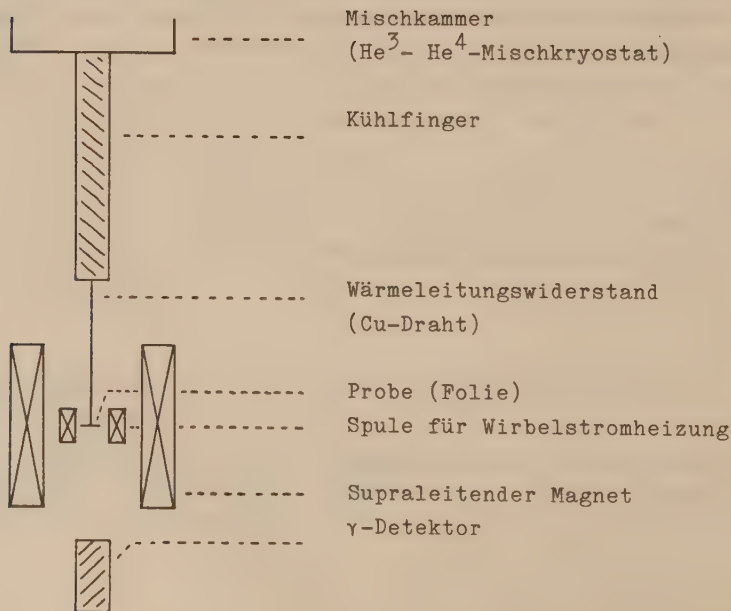
3.2. Die Methode des schnellen Temperatursprungs

Die Temperaturpuls-methode beruht darauf, daß die Temperatur innerhalb einer kleineren Zeit, als T_1 , beträgt, geändert wird. Dazu wird die Probe mit Hilfe von Wirbelstromheizung mit einem Hochfrequenz-Puls (ca. $10 \mu s$ lang) entsprechend aufgeheizt. Die Abkühlung wird bestimmt durch die thermische Zeitkonstante der Probenaufhängung, die jedoch im Bereich von einigen Millisekunden liegt.

Die Probe wird dabei "wirbelstromempfindlich" senkrecht zur Pulsspule angebracht und über einen Cu-Draht, als Wärme - widerstand, thermisch an den Kühlfinger angekoppelt; also genau nach dem umgekehrten Prinzip, wie bei der vorherigen Methode.

Der experimentelle Aufbau ist im folgenden Bild schematisch dargestellt:

Abbildung 3.2.1



Der Verlauf des gesamten Temperaturzyklus ist in der folgenden Abbildung 3.2.2 dargestellt.

In den Abbildungen in Kapitel 4.2. sind die eigentlichen Meßkurven dargestellt; sie sind Ausschnitte des gesamten Temperaturzyklus mit einer Zeitauflösung von 10 bzw. 4 μsec . Im kleinen Magnetfeld ($B_{\text{ext}} = 1.0 \text{ T}$) ist T_1 schneller als der Temperatursprung. Dies bietet die Möglichkeit, den erzeugten Temperaturlauf zu überprüfen.

Im hohen Magnetfeld ist T_1 länger als der Temperatursprung und kann aus der Kurve ermittelt werden. Dabei wird vorausgesetzt, daß der Temperaturverlauf im höheren Magnetfeld sich nicht geändert hat. Diese Frage soll aber später noch ausführlich behandelt werden.

Es sollen nun kurz noch einige Fragen zur Optimierung des Experimentes behandelt werden.

Zunächst die Berechnung der "kritischen Meßzeit" nach dem schon erwähnten Verfahren.

$$t_K^{-1} = \epsilon^2 \dot{N}$$

Die Zählrate in einem Kanal ist $\dot{N} = v \Delta t \dot{N}_{\text{Ges}}$, wobei

$\dot{N}_{\text{Ges}}$ = gesamte Zählrate (10kHz) ;

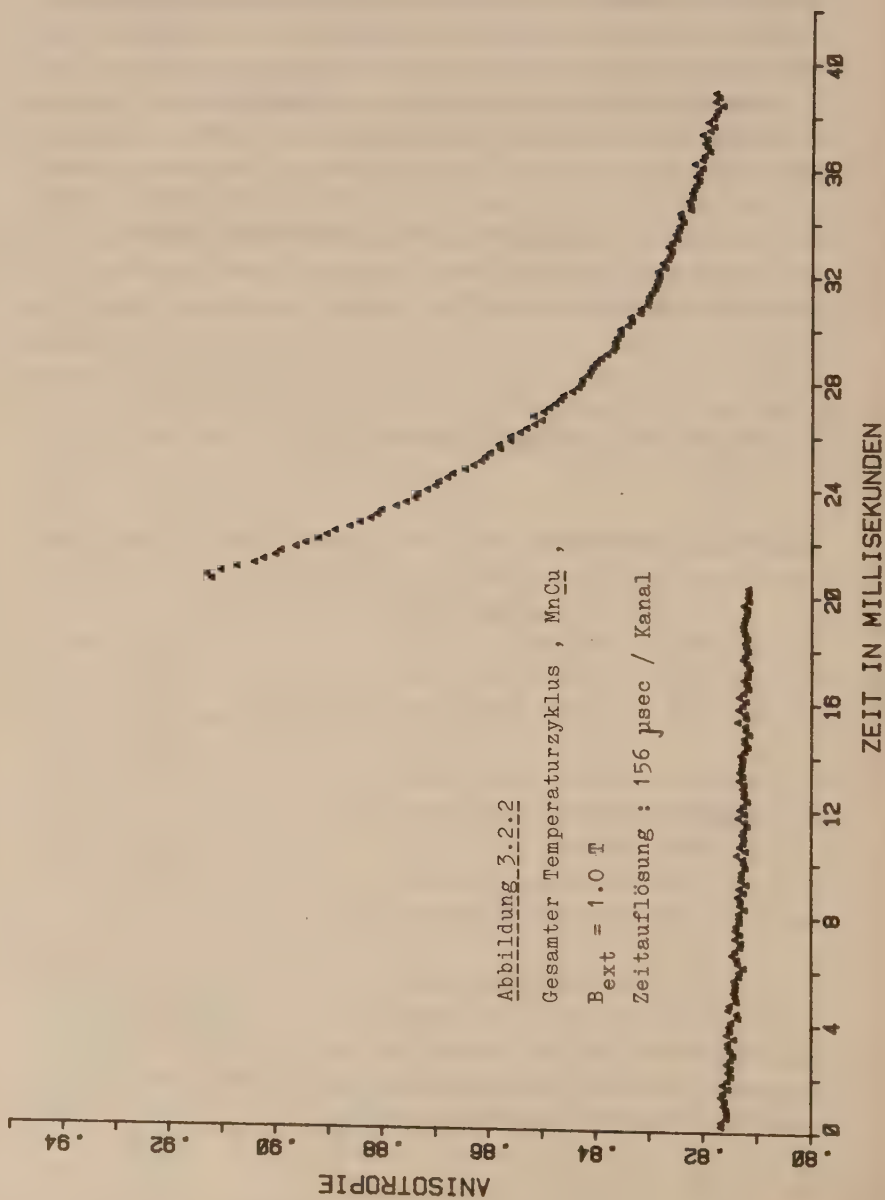
Δt = Kanalverweilzeit (= 10 μs);

v = Pulsrate (25 Hz) .

Damit ist die Zählrate in einem Kanal

$$\dot{N} = 2.5 \cdot 10^{-4} \cdot 10 \text{ kHz} = 2.5 \text{ s}^{-1}$$

Betrachtet man etwa 50 Punkte der Meßkurve als für die Messung notwendig oder als "nützliche Punkte", wird die Gesamtzeit also zu 1.25 % ausgenutzt.



Ein typischer Wert für den Effekt war 6 %.

Für t_K erhält man $t_K \approx 100 \text{ sec.}$

Die geringe Ausnutzung der Meßzeit zu nur 1.25 % scheint auf den ersten Blick ein großer Nachteil zu sein.

Lohnt es sich aber nun zu versuchen, mit einer höheren Pulsrate zu messen und dazu Anstrengungen zu unternehmen, kürzere thermische Zeitkonstanten durch Änderung der Probenankopplung zu erreichen ?

Dazu soll wieder die "Kritische Meßzeit" berechnet werden.

Es gilt näherungsweise : $\Delta T \sim \epsilon$

ΔT = Temperaturdifferenz des Temperatursprungs

Für $\dot{N}$ gilt: $\dot{N} \sim v$

Damit ist : $t_K^{-1} = \epsilon^2 \dot{N} \sim \Delta T^2 v$

Betrachtet man nun die Wärmelast für den Kryostat als die entscheidende Randbedingung, so erhält man mit

$P_w \sim \Delta T v$ (P_w - Wärmelast)

$t_K^{-1} \sim \Delta T P_w$.

Es ist also günstiger, mit großem ΔT und kleinen Pulsraten zu arbeiten. Damit lohnt es sich im allgemeinen nicht, die thermische Zeitkonstante τ zu verkürzen. Die Auswertung der Daten wird sogar dadurch erleichtert, daß $T_1 \ll \tau$ ist.

Bei den hier durchgeführten Messungen ist näherungsweise

$\tau / T_1 = 10^2$.

Damit kann eine nahezu konstante Endtemperatur im interessierenden Zeitbereich angenommen werden.

Im folgenden soll nun die Größe der Wärmelast berechnet werden. (Für die Kupferprobe)

$$\begin{aligned} \text{Ausgangsdaten: } m &= 40 \text{ mg} \hat{=} 6 \cdot 10^{-4} \text{ mol} \\ \text{spezifische Wärme bei 20 mK (LOU 74) } c &= 2.5 \cdot 10^{-2} \frac{\text{mJ}}{\text{mol K}} \end{aligned}$$

$$v \text{ (Pulsrate)} = 25 \text{ Hz}$$

$$\Delta T = 10 \text{ mK}$$

$$P = v \Delta T c m = \underline{\underline{3.8 \cdot 10^{-9} \text{ W}}}$$

Die Wärmelast liegt also weit unter der Kühlleistung des Kryostaten. Allerdings ist hier nicht die Masse des Lötzinns berücksichtigt, mit der die Probe am Wärmewiderstand (einem 0.3 mm Cu-Draht) angelötet wurde.

Welche Konzentrationen werden nun -z.B. bei Cu- erreicht, bei einer Probenmasse von 40 mg und einer Aktivität von 100 μCi Mn-54 ?

$$40 \text{ mg Cu} \hat{=} 6 \cdot 10^{-4} \text{ mol} \hat{=} 3.6 \cdot 10^{20} \text{ Atome.}$$

$$1 \mu\text{Ci Mn-54} = 3.7 \cdot 10^4 \text{ Zerfälle sec}^{-1}$$

Dies entspricht bei einer Halbwertszeit von 312 Tagen ($\tau = 450 \text{ d} = 3.89 \cdot 10^7 \text{ sec}$) $1.44 \cdot 10^{12}$ Atomen.

Damit beträgt die Konzentration bei einem μCi $4 \cdot 10^{-9}$, entsprechend bei 100 μCi 0.4 ppm.

Damit liegen die Konzentrationen noch in dem für Kernorientierungsmessungen üblichen niedrigen Bereich.

In welcher Größenordnung liegt nun die thermischen Zeitkonstante. Bei den hier besprochenen Experimenten wurde als Wärmewiderstand ein 0.3 mm Kuperdraht (Leitungskupfer) von 50 mm Länge verwendet.

Die Wärmeleitfähigkeit ρ von Cu wird in der Literatur (LOU 74) je nach Reinheit des Cu mit 1,3 bis 13 $\frac{\text{W}}{\text{K} \cdot \text{m}}$ angegeben.

Der Wärmewiderstand des verwendeten Drahtes $R = \rho L / F$ ist dann :

(R_1 =optimale Leitfähigkeit)

(R_2 =minimale Leitfähigkeit)

$$R_1 = \frac{1}{1.3} \text{ K m W}^{-1} \cdot 50 \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot F^{-1} = 5.44 \cdot 10^4 \text{ K/W}$$

$$R_2 = \frac{1}{1.3} \text{ K m W}^{-1} \cdot 50 \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot F^{-1} = 5.44 \cdot 10^5 \text{ K/W}$$

$$F = (0.15 \cdot 10^{-3} \text{ m})^2 \pi = 7.07 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2$$

Eine 40 mg Probe Cu besitzt nach LOU 74 eine Wärmekapazität von

$$c = 1.5 \cdot 10^{-8} \text{ Ws/K} .$$

Die Zeitkonstanten sind damit jeweils:

$$\tau_1 = \underline{\underline{0.82 \text{ msec}}}$$

$$\tau_2 = \underline{\underline{8.2 \text{ msec}}}$$

Diese Werte sind in guter Übereinstimmung mit den tatsächlich gemessenen Werten. Die Tatsache, daß die thermischen Zeitkonstanten von dieser Größenordnung sind, ist ganz entscheidend gewesen für den Erfolg dieser Methode.

Ausdehnung der Methode zu tieferen Temperaturen.

Für Metalle nimmt die Wärmekapazität (LOU 74) mit T ab, also $c \sim T$, die thermische Leitfähigkeit k geht mit $k = a T + b T^2$. (a, b) konstant

Der Term $a T$ geht auf elektronische Leitfähigkeit zurück und ist der dominierende Term, der Term $b T^2$ geht auf die Wärmeleitung durch Phononen zurück.

Die thermische Zeitkonstante $\tau = R C$ ist also nahezu temperaturunabhängig im Bereich tiefer Temperaturen, wenn der $b T^2$ Term dominierte, erhielte man :

$$\tau \sim c/k \sim T/T^2 \sim 1/T .$$

Die Wärmelast P_w geht mit :

$$P_w \sim c \sim T ,$$

die Kühlleistung bei He^3 - He^4 -Mischkryostaten (allerdings single shot Betrieb) mit T^2 .

Hat man also die maximale Wärmelast des Kryostaten schon voll ausgenutzt, ist lediglich zu erwarten, daß $t_k \sim T^{-1}$ gilt. Daher sollte die Methode auch gut bei noch tieferen Temperaturen anwendbar sein. Modernere Mischkryostaten erreichen bereits 5 mK als garantierte Minimaltemperatur.

Ausdehnung zu kleineren Relaxationszeiten

Nimmt man an, daß auch ein Temperatursprung innerhalb 1 μsec (statt 10 μsec) erzeugt werden kann, ergibt sich nur eine Verlängerung der Meßzeit um den gleichen Faktor 10, da die Zeitauflösung des Vielkanalanalysators entsprechend erhöht werden muß. Bei der Magnetfeld-Puls-Methode müßte zusätzlich noch berücksichtigt werden, daß die Modulations-

frequenzen verzehnfacht werden müßten. Bei sonst gleichen Bedingungen würde dies die Wirbelstrom-Wärmelast jedoch um zwei Größenordnungen steigern.

Erweiterung auf andere Isotope

Hier muß eventuell ein Verlust in der erreichbaren Zählrate berücksichtigt werden, der vom Zerfallsschema des verwendeten Isotops und den sonstigen kernphysikalischen Eigenschaften abhängt.

Ist der "Kernorientierungseffekt" aufgrund der Systemdaten kleiner, kann dies eventuell durch tiefere Temperaturen ausgeglichen werden.

Ein Anhaltspunkt kann der zuvor berechnete "duty-cycle" von 1.25 % für eine Messung mit 10 μ sec Zeitauflösung sein.

Weiter ist die radioaktive Heizung auf Grund von α - und β -Strahlung zu berücksichtigen, die sich auf Grund der Ankopplung durch einen Wärmewiderstand besonders stark bemerkbar machen würde. Hier muß versucht werden, diese Selbstabsorption durch geeignete Probenform (in Form dünner Folien) zu verringern.

Erfahrungen mit den Messungen von Kopp und Klein (KOP 82) lassen dies gut möglich erscheinen.

Homogenität der Folienaufheizung

Berechnet man die Leistungsdichte auf einer kreisförmigen Scheibe, die in einem homogenen Magnetfeld durch Wirbelströme erwärmt wird, so erhält man schon für $\omega \rightarrow 0$ eine inhomogene Verteilung.

Dazu denke man sich die kreisförmige Scheibe in konzentrische Ringe zerlegt mit der Breite Δr und der Dicke d .

(Es kann angenommen werden, daß keine Radialströme existieren.)

Die induzierte Spannung ist dann :

$$U = - \dot{B} \quad F = - \dot{B} 2 \pi r^2$$

Der ohmsche Widerstand eines Ringes ist dann:

$$R = \rho 2 \pi r \Delta r^{-1} d^{-1}$$

Die Masse eines solchen Ringes ist dann:

$$m = D V = D \Delta r d 2 \pi r \quad (D = \text{Dichte} , V = \text{Volumen})$$

Damit ist die Leistung P , die ein Ring erhält ,

$$P = U^2/R \sim r^3 .$$

Für die Temperaturerhöhung ist die Größe P/m maßgebend, daher

$$P/m \sim r^2 .$$

Die Berücksichtigung frequenzabhängiger Effekte, wie des Skin-effektes oder von Effekten, die auftreten, wenn Probendimension und Wellenlänge vergleichbar groß sind, würden das Problem sehr kompliziert machen. Bei einer Probenausdehnung von 5 mm x 5 mm und Frequenzen von 20 MHz sind solche Effekte aber noch zu vernachlässigen.

Im hier vorliegenden Fall kann aber experimentell gezeigt werden, daß die Probenaufheizung innerhalb der erreichten Meßgenauigkeit als homogen anzusehen ist. Der Grund hierfür ist in der schwachen thermischen Ankopplung der Probe zu sehen. Im übrigen konnte auch mit einer Sinushalbwellenlänge von 50 kHz als Heizpuls dergleiche Temperaturzyklus erzeugt werden.

Hier ergibt sich die Frage, ob man überhaupt eine obere Grenze für die Geschwindigkeit des Temperaturanstiegs angeben kann. Bei Metallen dominiert (bei $T \sim 20$ mK) bei der Wärmekapazität der Term der Elektronen ($c = T$), der Phononen-

term ($c \sim T^3$) ist zu vernachlässigen (LOU 74). Da die Wirbelströme direkt (ohne thermische Zeitkonstanten) mit den Elektronen ankoppeln, wäre die Begrenzung nur dann erreicht, wenn die Probenausdehnung und Wellenlänge von der gleichen Größenordnung wären, sodaß sich die aus der Hochfrequenztechnik bekannten Spannungs- und Stromverteilungen bilden würden.

Magnetfeldabhängige thermische Effekte

Wie aus der Technik der Kernentmagnetisierungsstufen bekannt, (LOU 74), überwiegt in einem starken Magnetfeld -wie hier benutzt- (2 - 5 Tesla) die Wärmekapazität der Cu-Kerne den der Elektronen erheblich, dies ist bekanntlich auch eine Voraussetzung für eine effektive Anwendung der Adiabatischen Entmagnetisierung mit Kupfer im Millikelvinbereich.

Nach Lounasmaa (LOU 74, Kap. 6) ist das Verhältnis der Wärmekapazitäten mit und ohne Magnetfeld ca 100 .

Es ist jedoch der langen Kernspingitterrelaxationszeit von Cu ($c_K = 1.1 \text{ sec K}$) (LOU 74, S.242) zu verdanken, daß sich dies nur sehr wenig auf unsere Messung auswirkt.

Die in der Probe vorhandenen Wärmekapazitäten sind im folgenden Bild schematisch dargestellt. Dabei bedeuten:

c_e = Wärmekapazität der Leitungselektronen

c_M = Kernwärmekapazität der Cu-Matrix

c_i = Wärmekapazität der Mn-Kerne

$R_M c_M = T_M = 55 \text{ sec}$

$R c_e = \tau \approx 3 \text{ msec}$

$R_i c_i = T_1 \approx 10 \text{ } \mu\text{sec}$

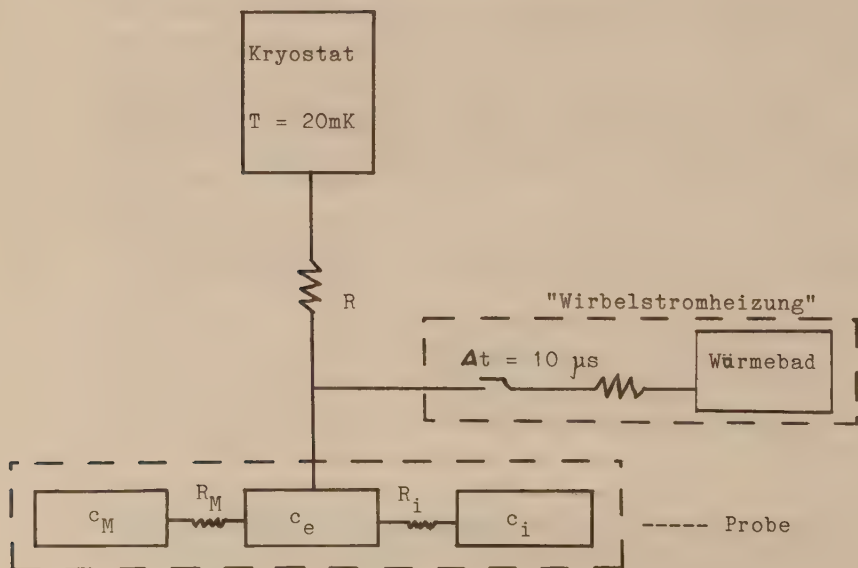
Die Wirbelstromheizung ist dargestellt als großes Wärmebad mit hoher Temperatur, mit dem die Probe für die Länge des Heizpulses verbunden wird.

Da die Zeitkonstanten jeweils 3 oder mehr Größenordnungen auseinanderliegen, kann bei der Messung von T_1 die Gittertemperatur als zeitunabhängig angenommen werden, für die Messung von τ (und auch T_1) kann die Temperatur der Cu-Kerne als zeitunabhängig angenommen werden.

Die Ergebnisse zeigen auch, daß τ unabhängig vom Magnetfeld ist. Wegen der Größe von c_M wird jedoch der Temperatursprung unter sonst gleichen Bedingungen kleiner. Dieser Effekt ist jedoch nicht zeitabhängig, da die Temperatur der Cu-Kerne als konstant angesehen werden kann.

Abbildung 3.2.3.

Wärmekapazitäten und Zeitkonstanten an der Probe
(Erläuterungen im Text)



Temperaturverlauf

Leider kann der Temperaturverlauf nicht direkt gemessen werden z.B. durch ein zusätzliches Isotop, da bisher in diesem Zeitbereich von ca 10 μ sec noch keine anderen Systeme gemessen werden konnten.

Zweifellos wäre dies eine gute Hilfe bei der Auswertung der Daten. Bis jetzt ist man darauf angewiesen, den Temperaturverlauf bei kleinen Feldern ($T_1 < \Delta t$; $\Delta t \hat{=}$ Zeitauflösung) zu messen und auf die Werte bei hohen Feldern ($T_1 > \Delta t$) zu übertragen.

Kontrollmöglichkeiten sind hier: evtl. Magnetfeldabhängigkeit der thermischen Zeitkonstante und anderer thermischer Parameter und die gemessene Magnetfeldabhängigkeit von T_1 ; jedoch werden diese nur benötigt, um auszuschließen, daß T_1 nicht doch kleiner, als gemessen ist.

Um zu zeigen, daß T_1 nicht größer ist, ist die Kenntnis des Temperaturverlaufs nicht nötig.

4. Ergebnisse

4.1 Durchführung der Experimente

4.1.1. Proben und Probenvorbereitung

Die hier gezeigten Messungen wurden insgesamt an je einer Kupfer-, Silber- und Gold-Folie ausgeführt. Das Material wurde in Folienform (Cu 12 μm , Ag 25 μm , Au 25 μm) von der Firma MRC mit dem höchsten Reinheitsgrad (MARZ) bezogen.

Das trägerfreie Mn-54 wurde als MnCl_2 in einer HCl Lösung bezogen. Durch Verdampfen der Lösung wurde das MnCl auskristallisiert und in Methanol aufgenommen, und sodann auf die Probenfolien aufgebracht. Diese wurden dann in Wasserstoffatmosphäre 48 Stunden auf 800° C gehalten. Danach wurde durch einen Wischtest festgestellt, ob noch nicht diffundierte Aktivität sich auf der Probenoberfläche befand und ggffls. entfernt. Dieser Teil lag unter 10 %.

Ein endgültiger Probestest bestand darin, ob bei der Messung das aus der Literatur bekannte Hyperfeinfeld festgestellt wurde. Schwierig bei der Probenpräparation sind Vermeidung von Oxydation und, daß wegen des relativ hohen Dampfdruckes des Mangan nicht zu hohe Temperaturen (oder gar das Schmelzen) verwendet werden können. Die Verwendung der dünnen Folien brachte auch in allen Fällen "gute" Proben, bei dickeren Folien ergaben sich Probleme. Die Masse der Proben betrug bei Au und Cu 65 mg, bei Ag 38 mg. Die Folien wurden auf eine Größe von 5 x 5 mm gefaltet und über einen Kupferdraht (0.3 mm) von ca 25 mm Länge an den Kühlfinger des Kryostaten angelötet. Bei der Gold-Probe wurde eine Lötverbindung aus InGa verwendet wegen der hohen Löslichkeit von Gold in Zinn bei den üblichen Löttemperaturen.

Die Aktivitäten der Proben lagen bei der Cu- und bei der Ag-Probe bei 66 μCi und bei der Au-Probe bei 33 μCi . Das ergibt bei Annahme einer homogenen Verteilung folgende Konzentrationen: Cu-Probe 0.15 ppm, Ag-Probe 0.45 ppm und Au-Probe 0.2 ppm.

4.1.2. Nachweis der γ - Strahlung

Der Nachweis der γ - Strahlung wich insofern von dem Standardverfahren ab, als statt eines NaJ - Detektors ein Ge(Li) - Detektor verwendet wurde, obwohl das verwendete Isotop Mn-54 nur eine γ - Linie aussendet. Wegen der räumlichen Nähe des 5.4 T - Magneten konnte jedoch kein NaJ - Detektor verwendet werden. Der Verlust an Zählrate durch die geringere Ansprechwahrscheinlichkeit des Ge(Li) - Detektors wurde damit ausgeglichen, daß nicht nur die Photolinie, sondern auch der Comptonbereich mitgemessen wurde. Der Gewinn an Zählrate erreichte dadurch ungefähr 10. Da das verwendete Isotop nur eine Linie aussendet, sollte dieses unübliche Verfahren eigentlich ohne weiteres anwendbar sein. Es zeigte sich jedoch, daß der Kernorientierungseffekt, gemessen über Comptonbereich und Photolinie, geringer ausfiel als nur über die Photolinie gemessen trotz des Einlinienspektrums. Die γ - Quanten, die im Detektor im Comptonbereich liegen, können nämlich auch schon vorher im Material des Magneten durch Comptoneffekt gestreut worden sein und damit die Probe unter einem anderen Winkel als parallel zum Feld verlassen haben. Die Korrektur dieses Effektes ist bei der benutzten Apparatur ca. 60 % (d.h. der Kernorientierungseffekt beträgt scheinbar nur 60 % des erwarteten Wertes.) Da jedoch der P_2 - Term überwiegt, ist diese Korrektur linear. Der Meßzeitgewinn durch das Mitzählen des Comptonbereiches beträgt daher nur um 3 bis 4.

Außerdem ermöglichte der Ge(Li) - Detektor die Benutzung eines zusätzlichen Thermometers ($^{60}\text{CoCo}$) mit im Vergleich zur ^{54}Mn - Probe sehr geringen Intensität zu Testzwecken.

4.1.3. Zeitsteuerung des Temperaturzyklus

Zur Zeitsteuerung des Temperaturzyklus wurde ein digitaler programmierbarer Rechteck-Funktionsgenerator mit 8 - fachen Ausgang benutzt. Die Zeitachse bestand dabei aus 1024 "Takten" von 1 μ sec Länge, auf denen das logische Signal 0 (= 0 V) oder 1 (= 5 V) gesetzt werden konnte bei 8 parallelen Signalen. Mit dieser "speicherprogrammierbaren Ablaufsteuerung" konnten die Zeitdifferenzen zur Steuerung des Heizpulses und dem Start des Vielkanalanalysators sowie der Kanalfortschaltung im 1 μ sec-Raster quarzgesteuert generiert werden, wobei als wichtigstes Detail die Quarz-Steuerung hervorzuheben ist. Dadurch ist sichergestellt, daß nicht durch Streuung der apparativen Zeitdifferenzen der Meßeffect vertauscht wird. Bei einer typischen Stabilität von $10^{-5}/d$ für einen Schwingquarz und einer Temperaturstabilität von ebenfalls 10^{-5} (0° - $30^{\circ}C$) ergibt sich bei einer Zeitdifferenz von 1 msec zwischen Start des Vielkanalanalysators und dem Heizpuls nur eine Verschiebung von 10^{-2} μ sec. Da insgesamt ein Raster von 8 x 1024 Takten zur Verfügung stand, konnten mehrere Vielkanalanalysatoren mit verschiedener Zeitauflösung parallel betrieben werden. Dies war wichtig für die Messung der thermischen Zeitkonstante der Probenaufhängung.

Als ein weiteres wichtiges Detail ist der Hochfrequenzgenerator zu nennen. Die Heizung geschah durch Wirbelstromheizung bei 20 MHz. Die Dämpfung in den Tastpausen muß wegen der kurzen Pulse jedoch sehr hoch sein. Beispielsweise muss sie bei einem Puls von 4 μ sec Länge und 25 Hz Pulsrate schon 40 dB betragen, um in den Pausen im Mittel soviel Leistung wie während des kurzen Pulses passieren zu lassen.

Daher ist eine Dämpfung von 50 - 60 dB anzustreben. Erreicht wurde dies durch einen HF - Generator, der das 20 MHz Sinus - Signal aus einem 10 MHz Rechtecksignal erzeugte, das mit einem digitalen Signal ausgetastet werden konnte.

4.1.4. Verfahren zum Fitten der Relaxationskurven

Die theoretischen Relaxationskurven wurden nach dem zuvor beschriebenen Verfahren berechnet. Zur Ermittlung der Temperaturfunktion wurde wie folgt verfahren. Durch Berechnung der linearen Regression wurde die Anisotropie von ca. 1 msec nach dem Heizpuls, d.h. mehr als $10 T_1$ nach dem Temperatursprung, bis zur Zeit des Heizpulses extrapoliert. Der Wert vor dem Heizpuls wurde durch einfache Mittelung der Kanäle vor dem Heizpuls bestimmt. Für die Zeit während des Heizpulses wurde ein lineares Ansteigen der Anisotropie angenommen. Dieser Teil der Temperaturkurve umfaßt jedoch nie mehr als zwei Kanäle und wurde beim Fitten nicht gewertet. Nach diesem Verfahren sind Fits mit einem Parameter möglich und zeigen praktisch die gleiche Übereinstimmung wie die später zur eigentlichen Auswertung benutzten 2 - Parameterfits. Diese Methode hat jedoch den Nachteil, daß in ungünstigen Fällen die angenommene Temperaturfunktion - ausgedrückt als Anisotropiefunktion - von der Meßkurve - noch innerhalb der Fehlergrenzen - abweicht und damit den Fit negativ beeinflusst. Und dies auch in einem Zeitbereich, der mehrere Relaxationszeiten nach dem Heizpuls liegt.

Anstatt nun den Zeitbereich (oder Kurventeil) für die Berechnung der Linearen Regression zu modifizieren, wurde die Lösung gewählt, daß die Gittertemperatur nach dem Heizpuls als zweiter Fitparameter eingeführt wurde.

Die Temperaturkurve wurde dabei wie zuvor die Anisotropiekurve berechnet. Die Temperatur ca. 1 msec nach dem Temperatursprung blieb dabei konstant.

Mit diesen zwei Fitparametern - c_K und T_F - waren Fits mit guter Übereinstimmung zu erzielen.

Die Kurven für $B_{ext} \leq 1 T$ zeigen das Problem, daß die Relaxationszeiten schon unter der Zeitauflösung liegen. Hier kann nur eine obere Abschätzung gegeben werden und die Übereinstimmung zwischen Fit- und Theoriekurve ist

auf Grund der zu geringen Zeitauflösung nicht so entscheidend. Die Messungen sind jedoch wichtig, um zu zeigen, daß mit der gewählten Probenaufhängung überhaupt Temperatursprünge mit der für höhere Felder angenommenen Geschwindigkeit möglich sind.

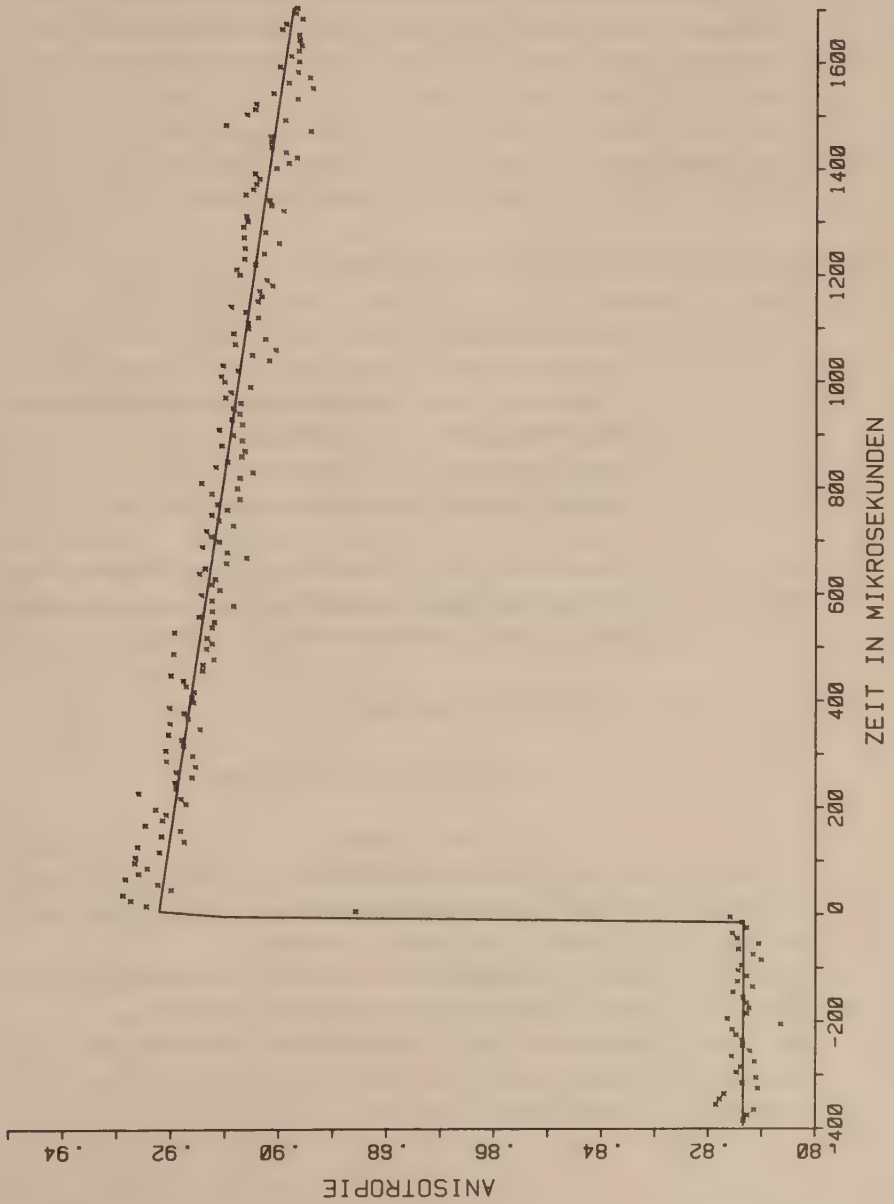
Möchte man die Relaxationszeiten auch bei diesen Feldern messen, so sollte - bei entsprechender Verlängerung der Meßzeit - eine Meßreihe mit höherer Zeitauflösung mit einem TPHC gemacht werden.

Es sei noch erwähnt, daß die Temperaturfunktion selbst leider nicht direkt gemessen werden kann, da andere Thermometer mit derartiger Zeitauflösung nicht zur Verfügung stehen. Ohne Kenntnis des Temperaturverlaufs scheint es jedoch sicher, daß die Relaxationszeiten nicht länger sein können, als sie mit dieser Methode gemessen wurden.

Die folgende Abbildung (Abb. 4.1.) zeigt für eine Messung an MnCu bei 0.5 T die durch lineare Regression aus dem Zeitbereich 1.1 msec bis 2.1 msec extrapolierte Temperaturfunktion. Der Heizpuls selbst hat hier eine Länge von 9 μsec , (entsprechend 0.9 mm bei einem Maßstab von 0.1 msec / cm.) Direkt nach dem Heizpuls weicht die Temperaturfunktion von der Meßkurve geringfügig ab.

Auf Grund ähnlicher Effekte wird ein 2 - Parameterfit auch bei den übrigen Messungen erforderlich .

Abbildung 4.1. (Erklärungen im Text)



4.2. Liste der Ergebnisse

Im folgenden werden die Ergebnisse in tabellarischer Form dargestellt. Ebenso wird ein Teil der Messkurven mit Fitkurve gezeigt.

4.2.1 Messkurven mit Fit

Folgende Symbole wurden dabei benutzt:

B	externes Magnetfeld
T_i	Temperatur, vor dem Heizpuls
T_f	Temperatur, nach dem Heizpuls, durch Extrapolation, bzw. Fit ermittelt.
c_K	Korringakonstante
T_R	Relaxationszeitkonstante, ermittelt durch einen Fit mit einer e - Funktion. Diese Größe soll einen Anhaltspunkt geben für die zu messenden Zeiten und die Größe der Fehler bei Anwendung des "Korringa-Gesetzes" $T_1 T = c_K$.
t_H	Länge des Heizpulses
χ^2, n	χ^2 und Anzahl der Freiheitsgrade

Die Fehler der gefitteten Werte für die Korringakonstante betragen, wenn nur die statistischen Fehler der Meßpunkte berücksichtigt werden, nur einige Prozent.

Schon der Vergleich einiger Meßreihen mit der gleichen Probe läßt jedoch bereits größere Streuung erkennen. Der Grund liegt darin, daß die Parameter, wie Anfangs- und Endtemperatur, genaue Lage des Heizpulses und die verwendete Temperaturkurve in sehr komplizierter Weise

die ermittelte Korringakonstante erheblich beeinflussen. Weiterhin war die Temperatur des Kryostaten auf Grund konstruktiver Eigenheiten über einen 24 h - Zyklus nicht konstant (bedingt durch unterschiedlichen Heliumstand), sodaß die gemessenen Temperaturen Mittelwerte über mehrere tägliche Zyklen sind. Dies entsprach einer Streuung z.B. für die Anisotropie der Anfangstemperatur von typisch 3%, für die Temperatur selbst von 9 %. Eine verlässliche, alle Faktoren einschließende Fehlerangabe ist daher nur mit einer Messreihe über verschiedene Temperaturen, Proben und Pulstechniken möglich.

Aus den hier gefundenen Streuungen der Werte für die Korringakonstante müssen Fehler um 20 % angenommen werden. Dieser Fehler kann aber noch als klein angesehen werden, da die Relaxationszeiten zuvor nur auf mehrere Größenordnungen abgeschätzt werden konnten.

Bei einer entsprechend genauen Theorie erscheint es lohnend, mit einer entsprechenden Meßreihe bis zu der von der Statistik gegebenen Genauigkeitsgrenze auch zu messen.

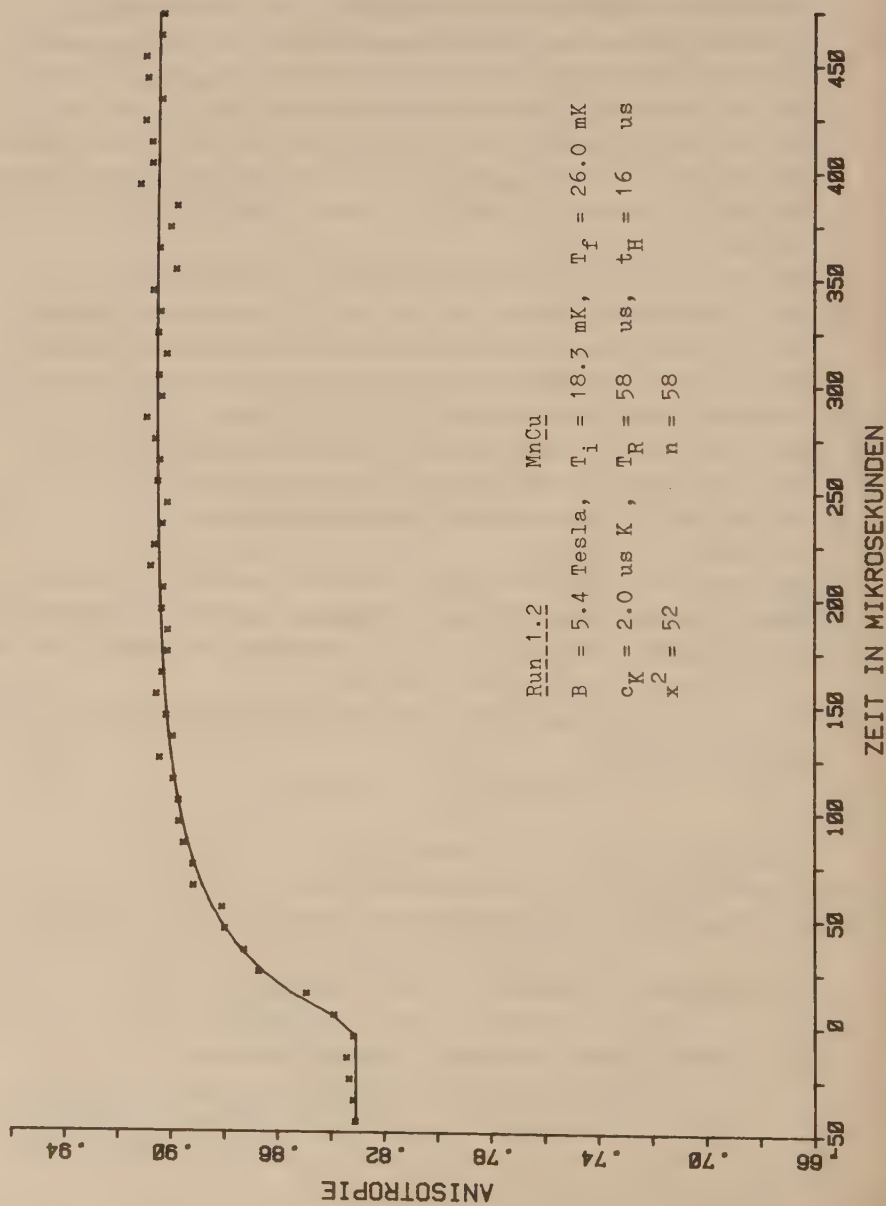
Zur Berechnung der Korringakonstanten müssen die Hyperfeinfelder bekannt sein. Die bei den Proben gemessenen Hyperfeinfelder stimmten mit denen aus der Literatur bekannten innerhalb der Fehlergrenzen überein. (FLO 78)

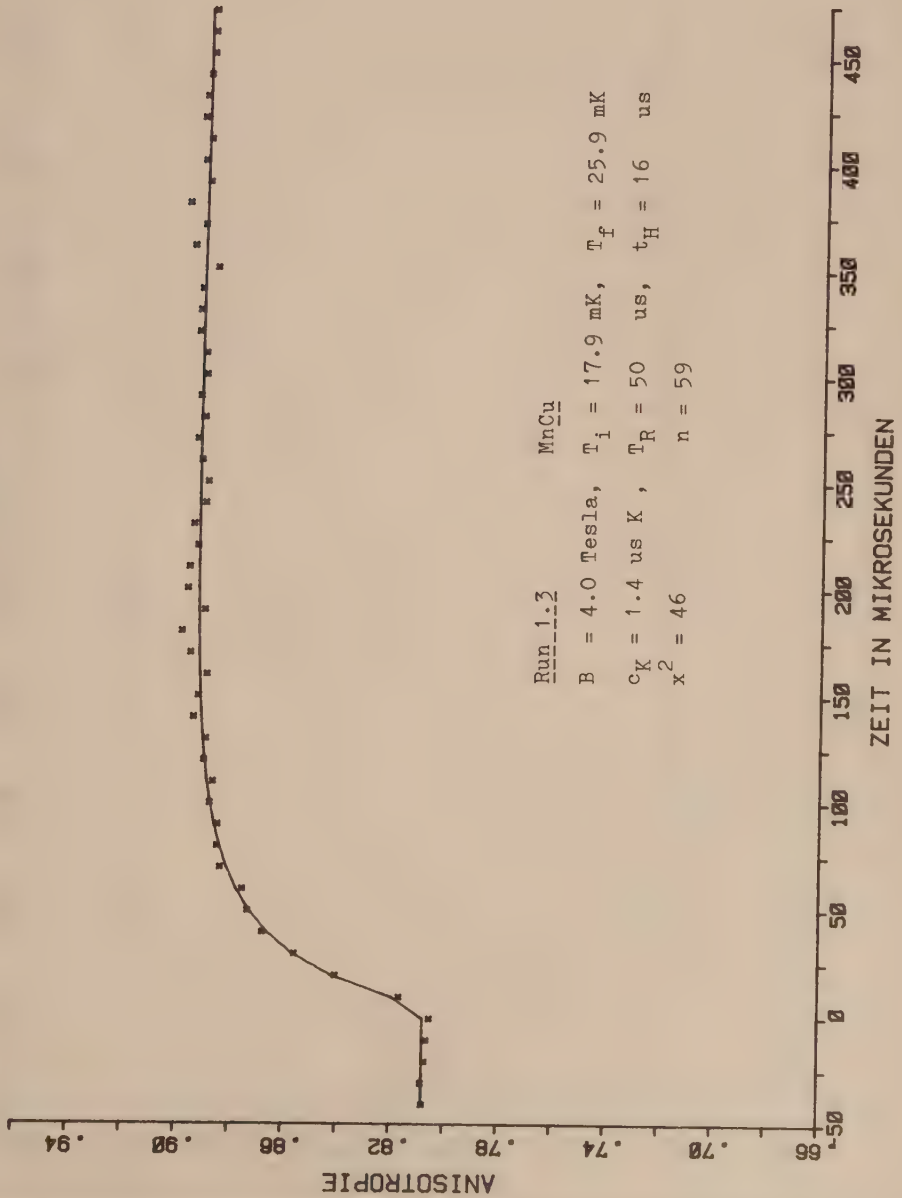
Für diese Auswertung wurden folgende Werte (die Literaturwerte) benutzt.

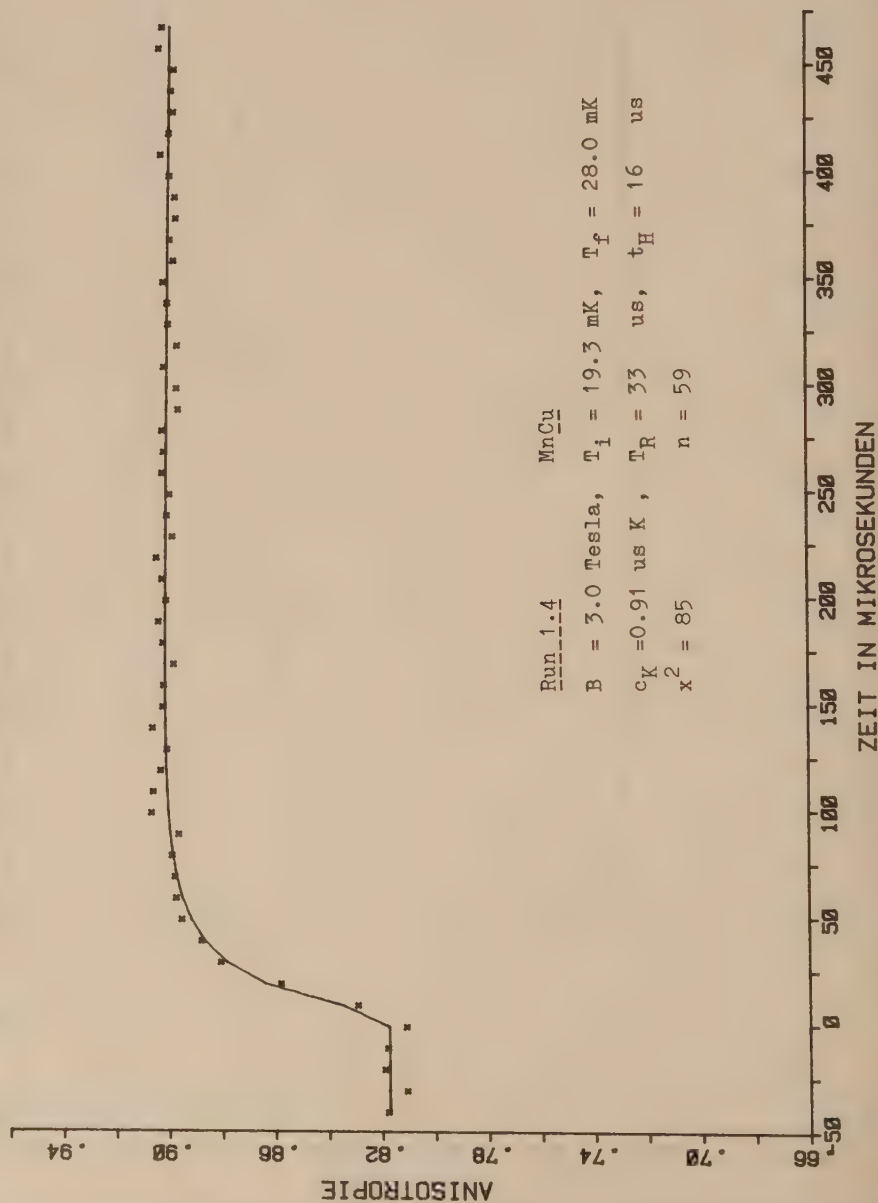
MnCu	$B_{\text{Hyp}} = -28 \text{ T}$	, gemessen	$-28.7 \text{ T} \pm 1 \text{ T}$
MnAg	$B_{\text{Hyp}} = -32.8 \text{ T}$	, gemessen	$-31.9 \text{ T} \pm 1.4 \text{ T}$
MnAu	$B_{\text{Hyp}} = -40 \text{ T}$	, gemessen	$-39.4 \text{ T} \pm 2.2 \text{ T}$

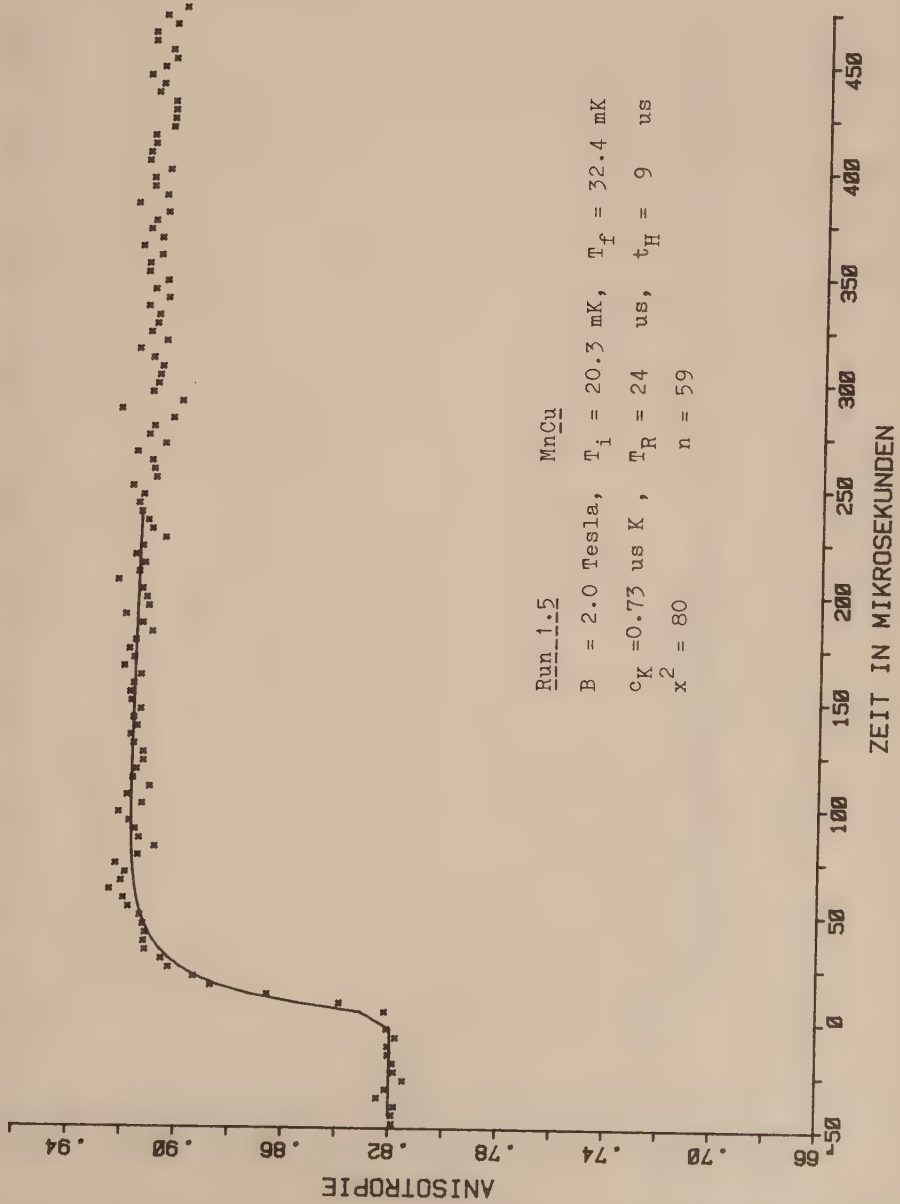
Messtemperatur: zwischen 15 und 18 mK, $B_{\text{ext}} > 1 \text{ T}$

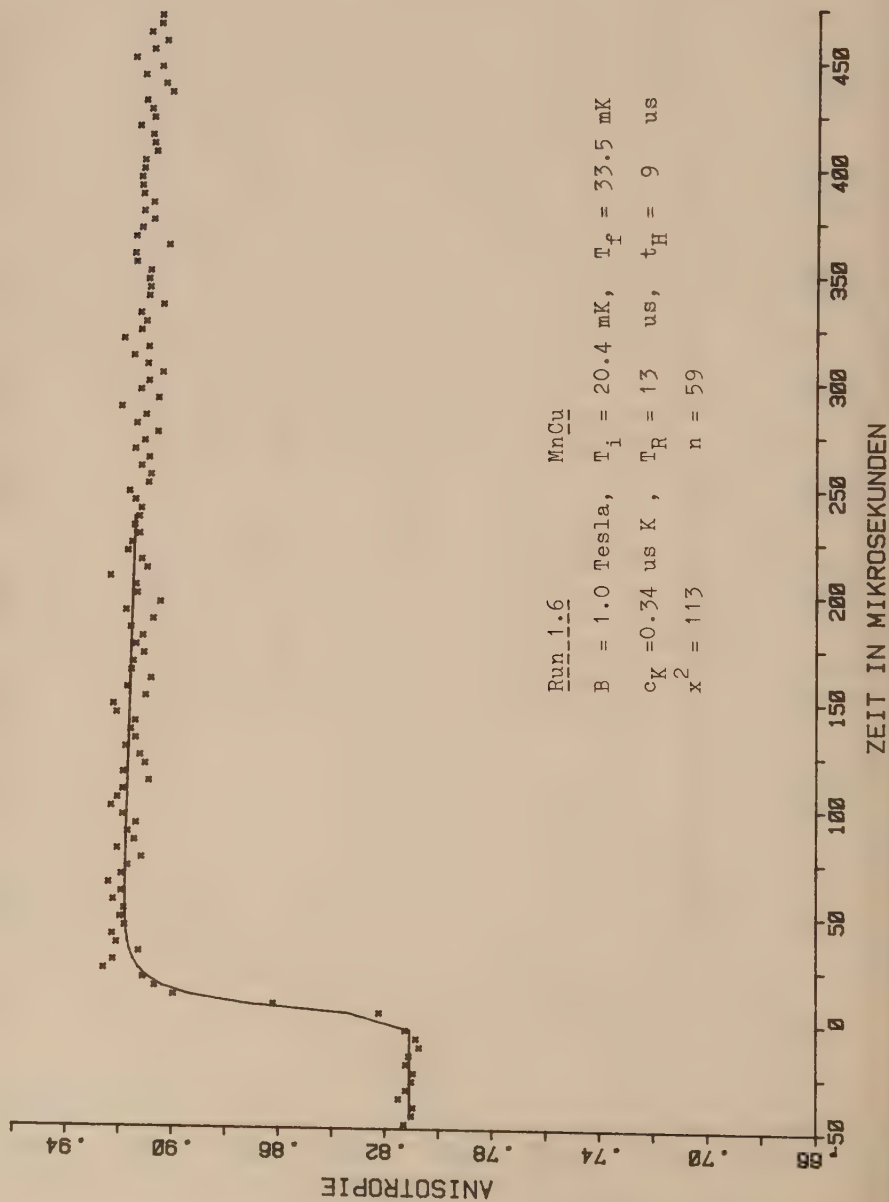
Die Meßzeit betrug zwischen 24 und 48 Stunden.

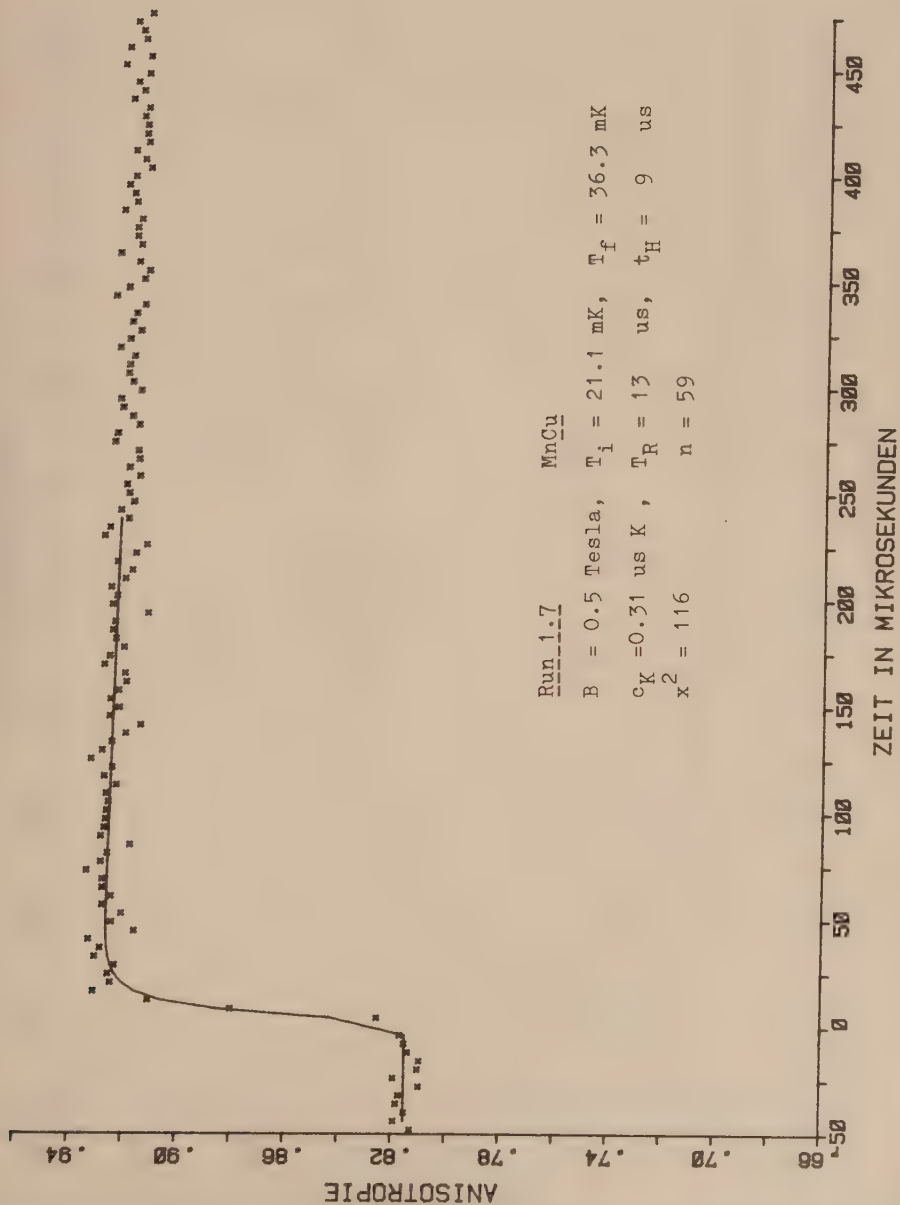


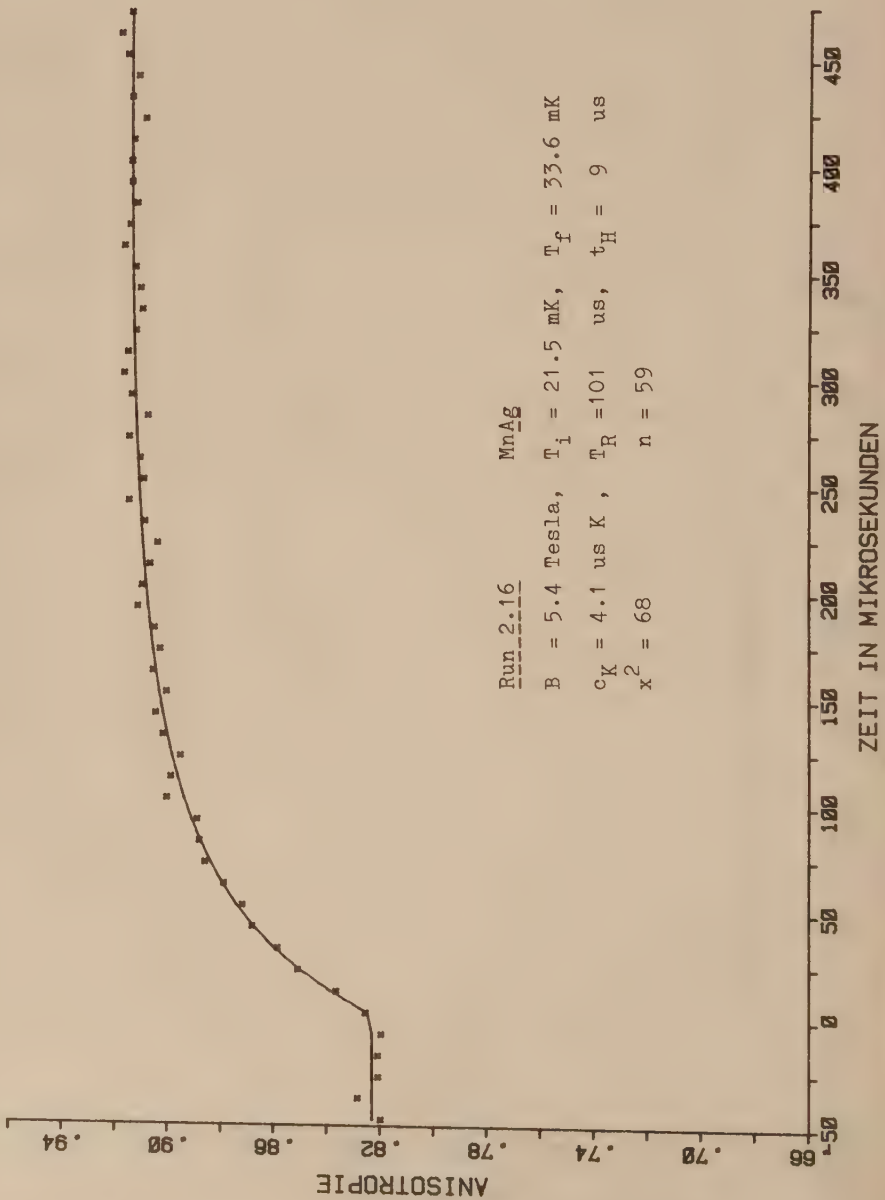


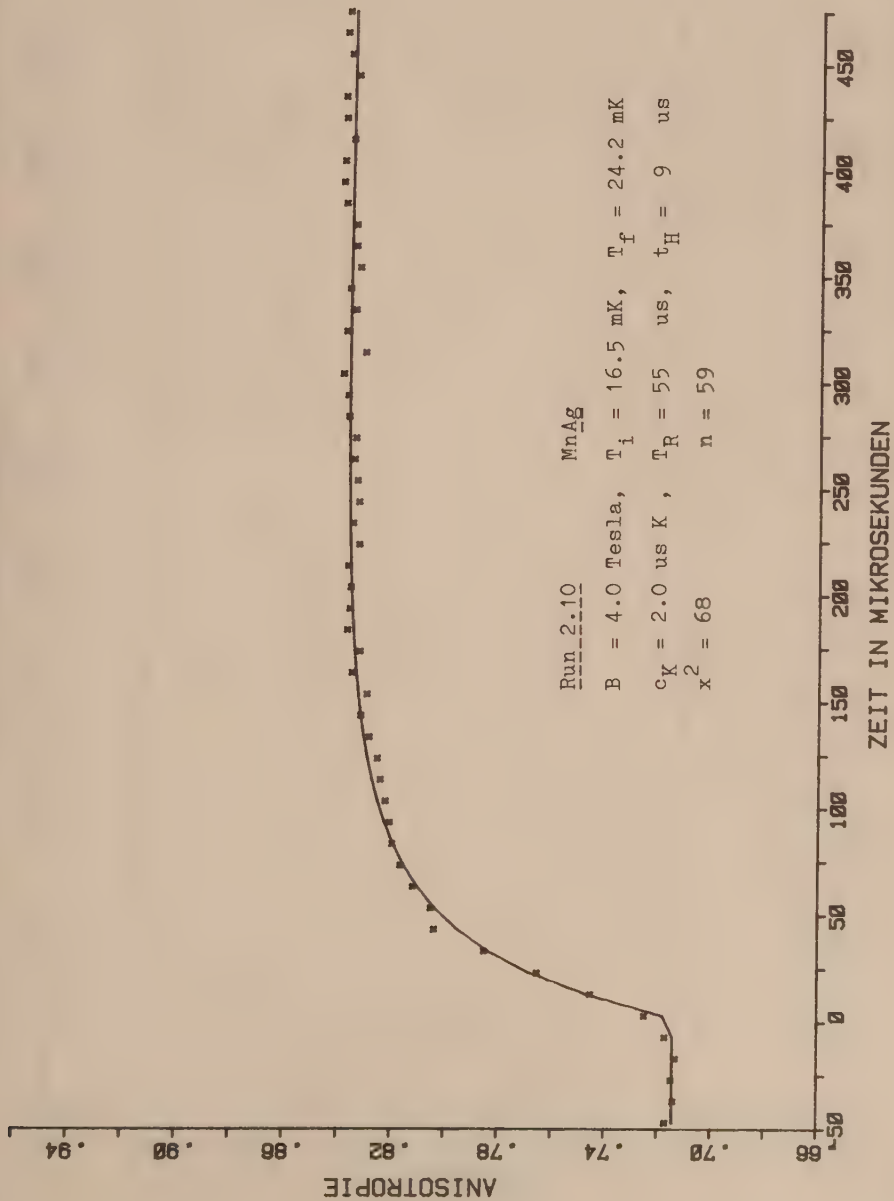


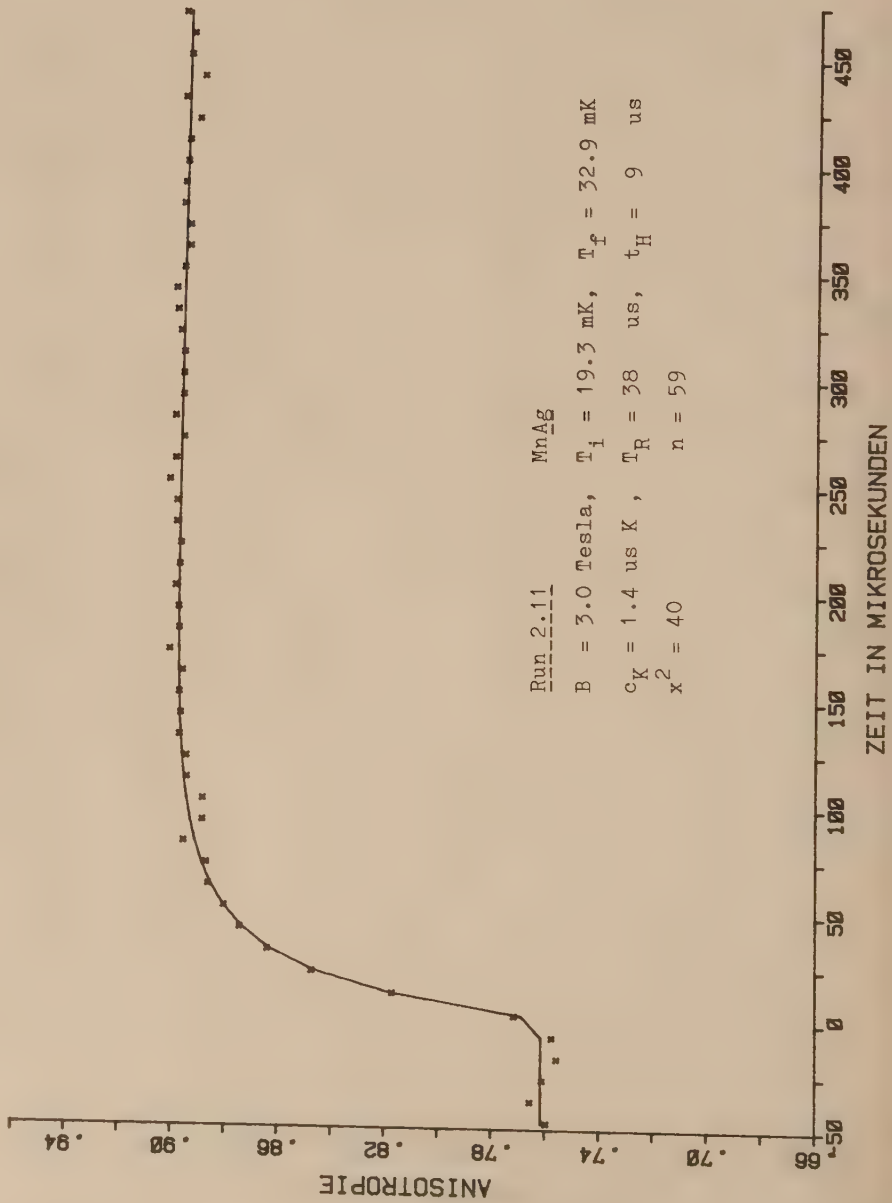


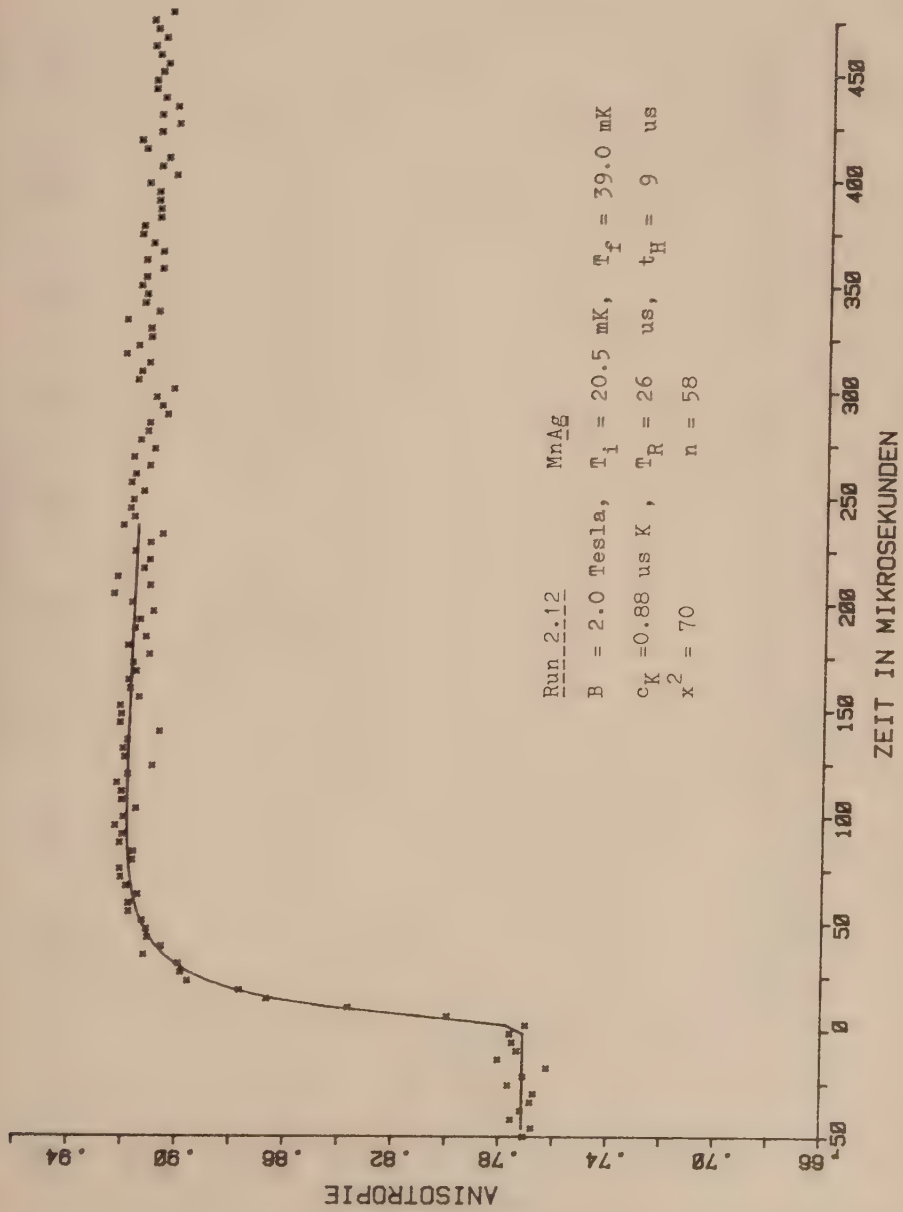


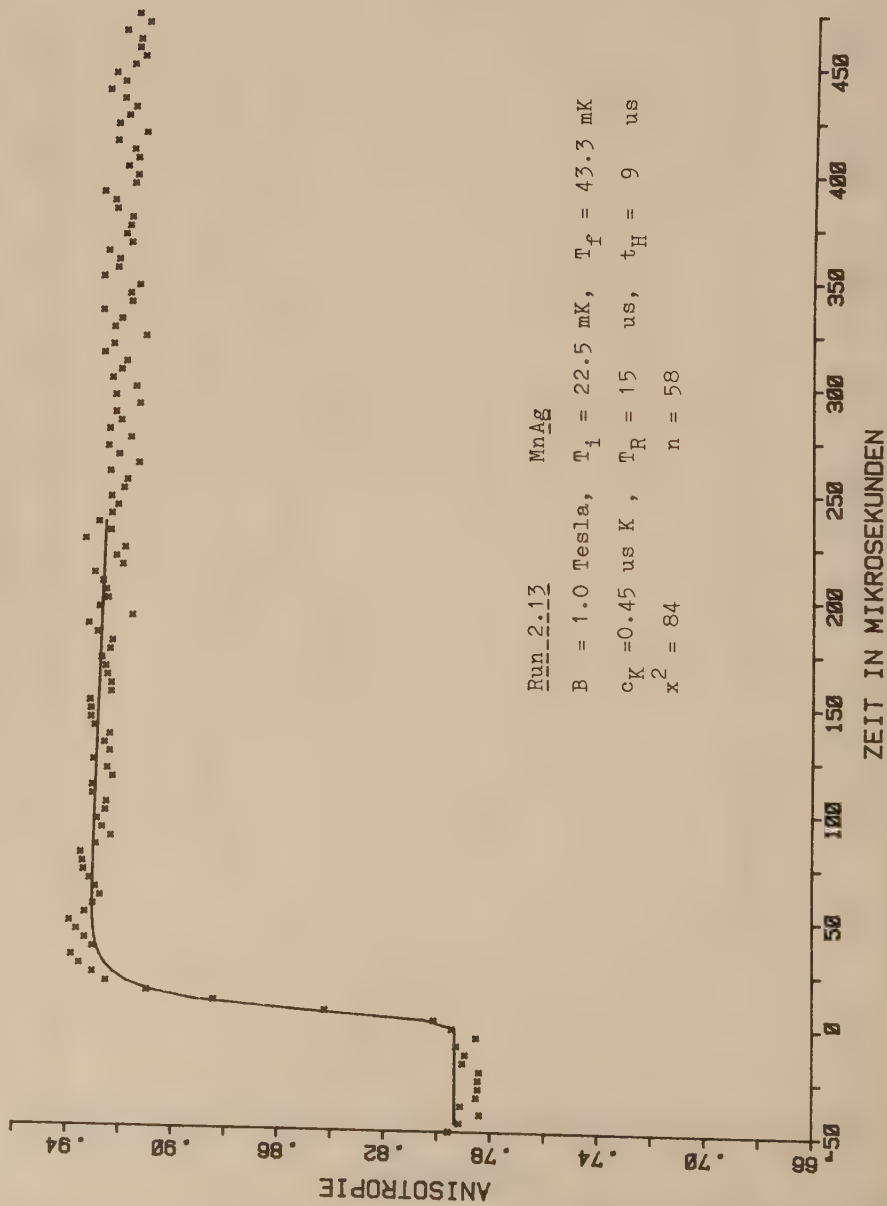


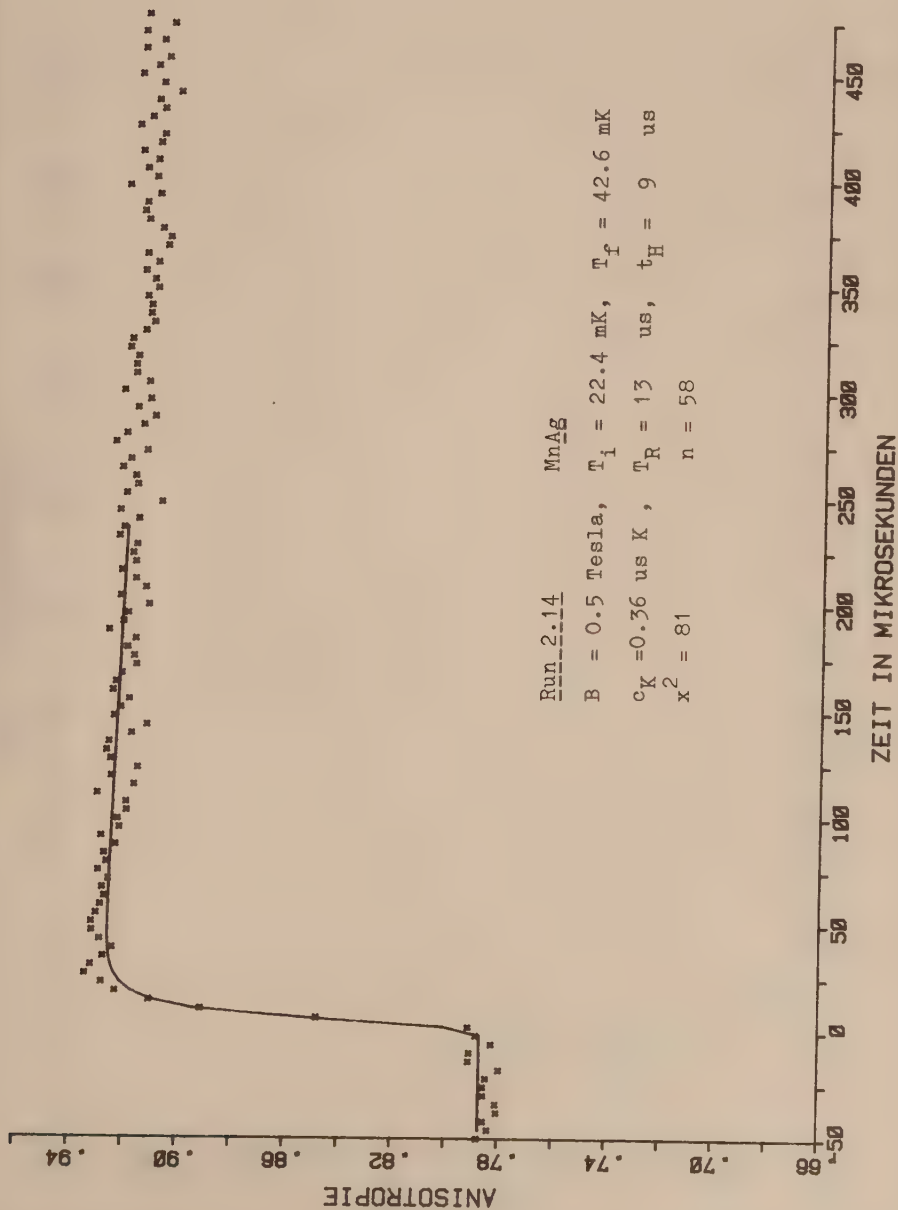


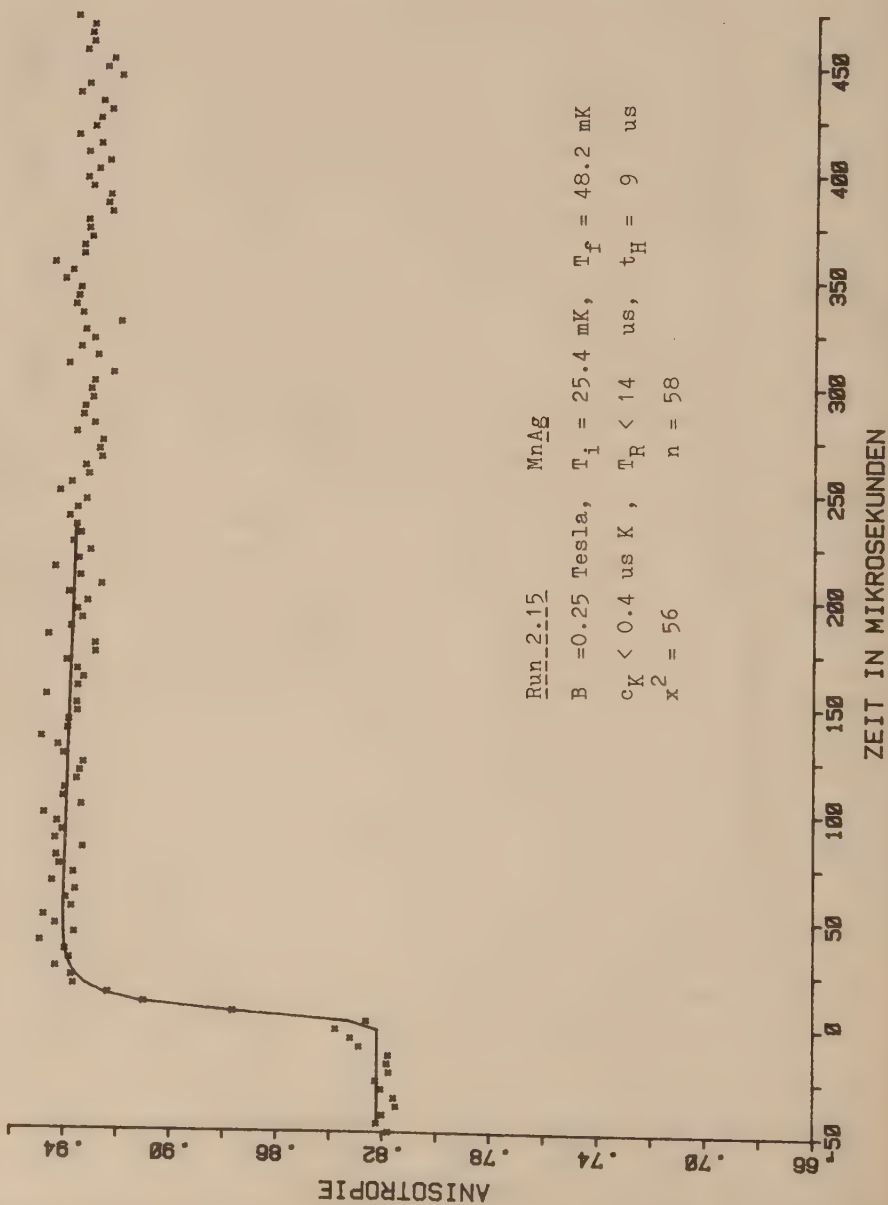


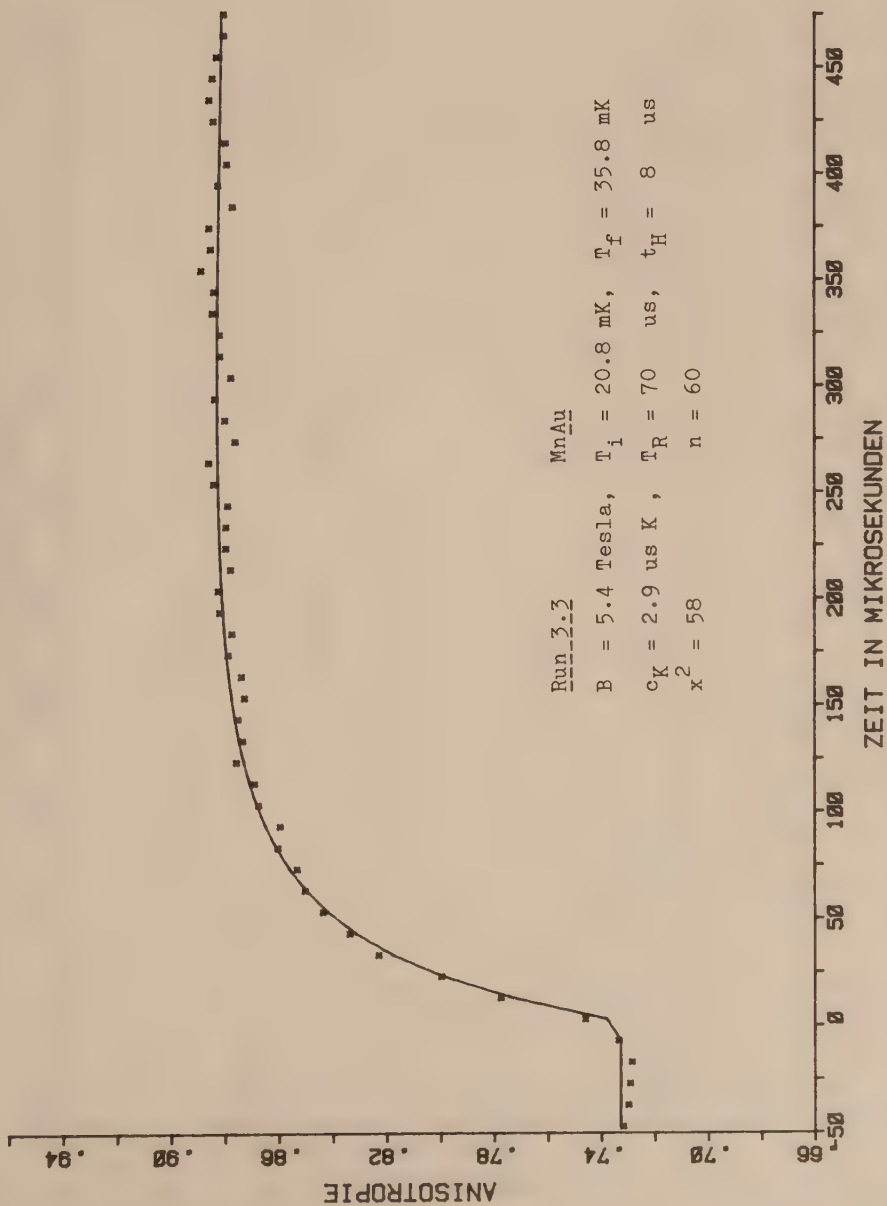


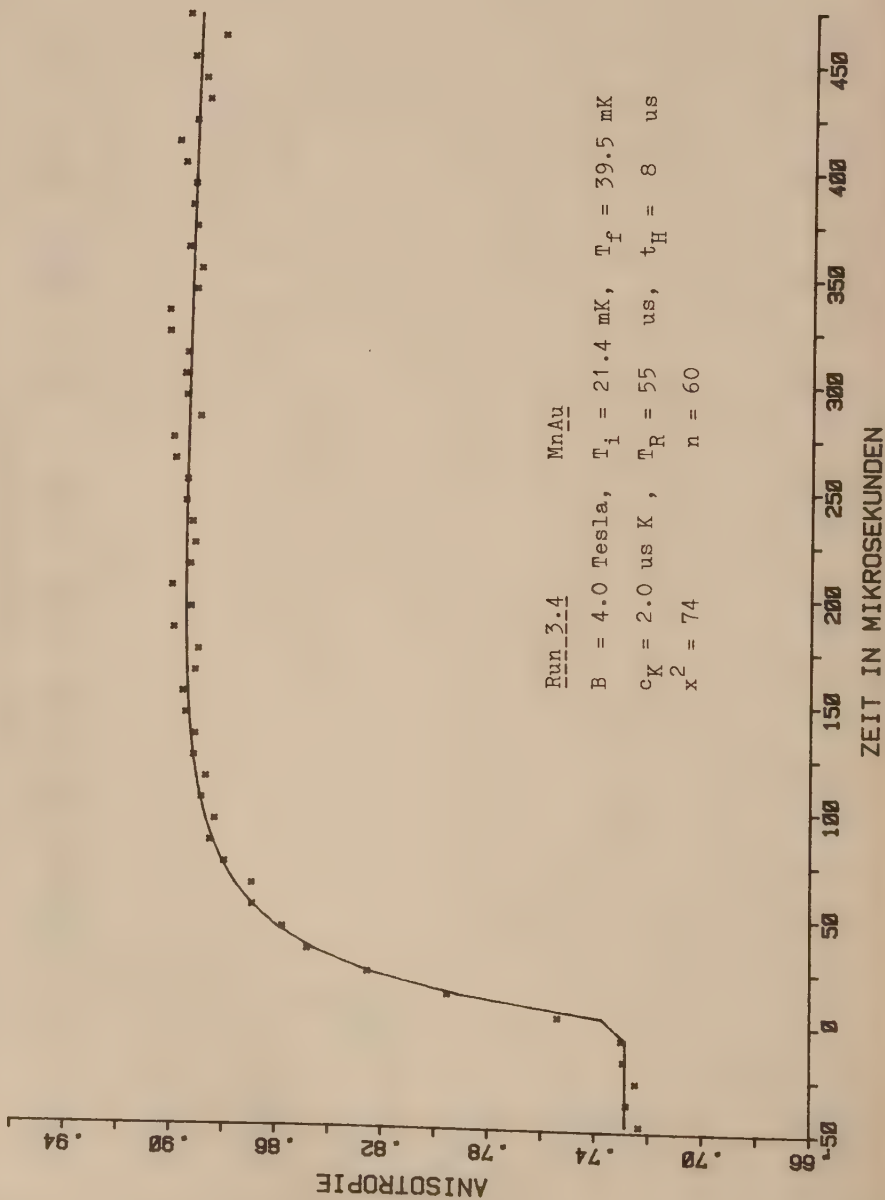


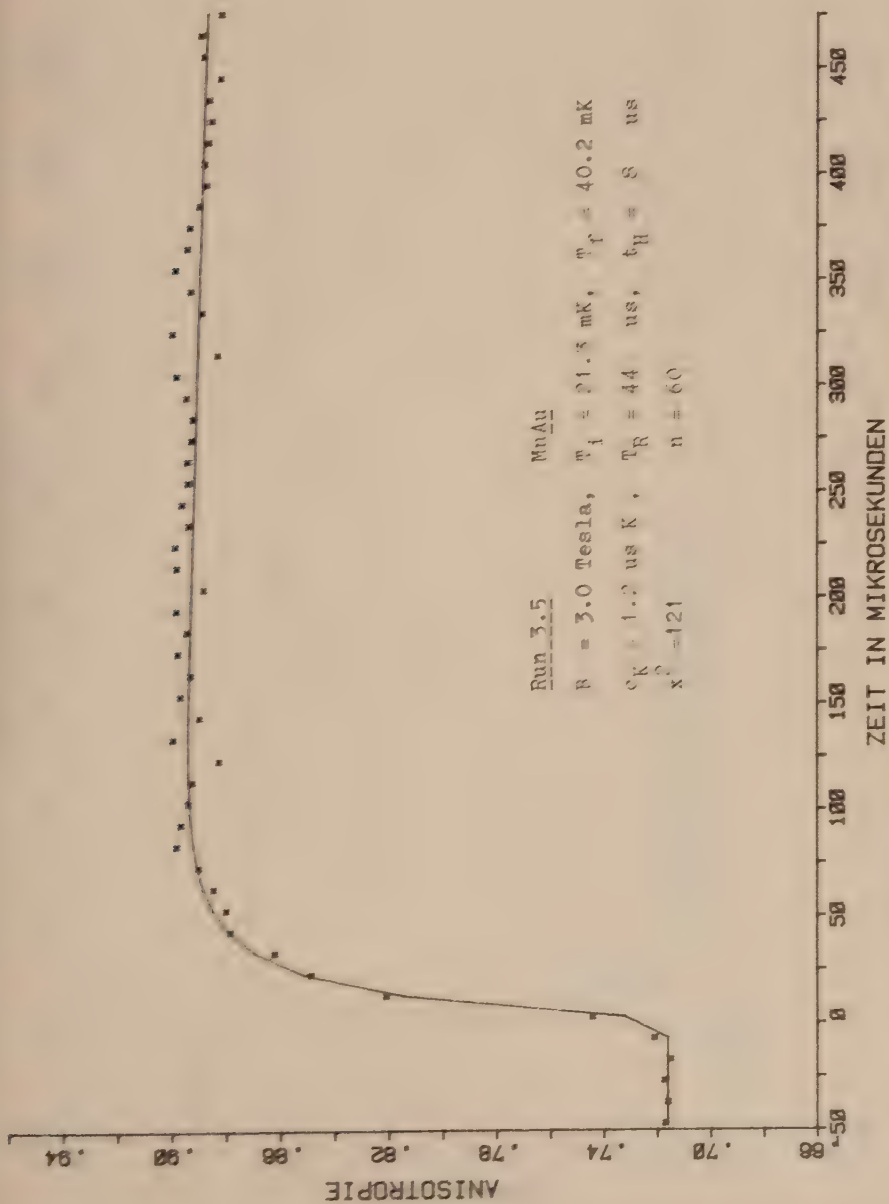


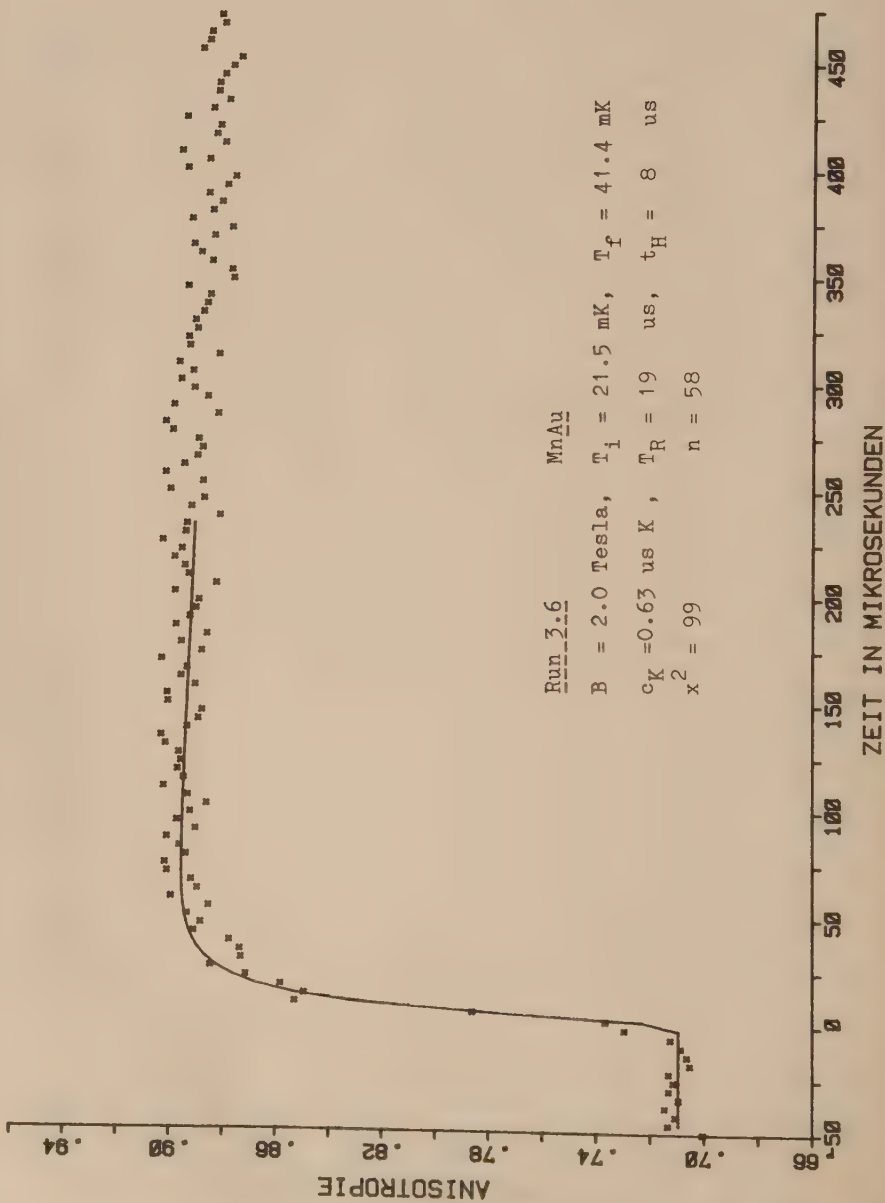


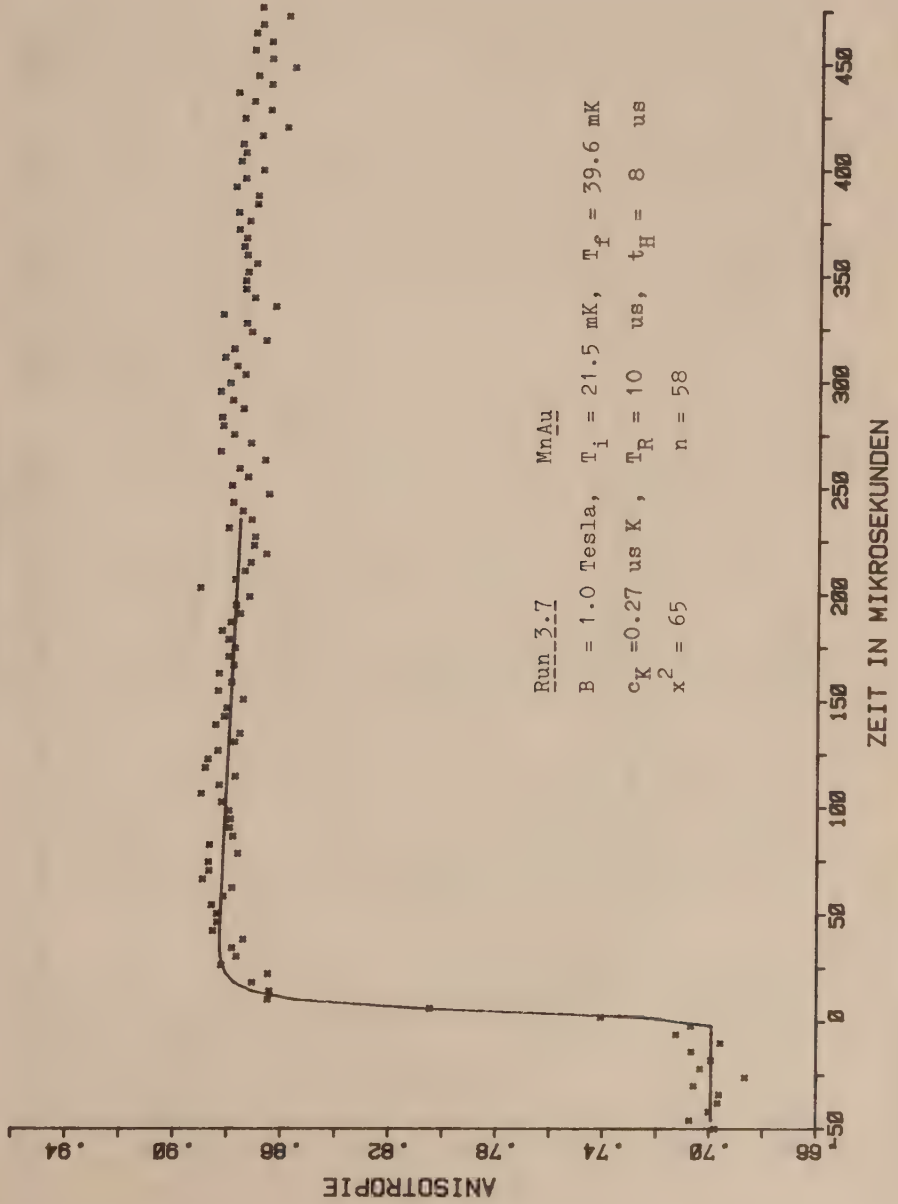








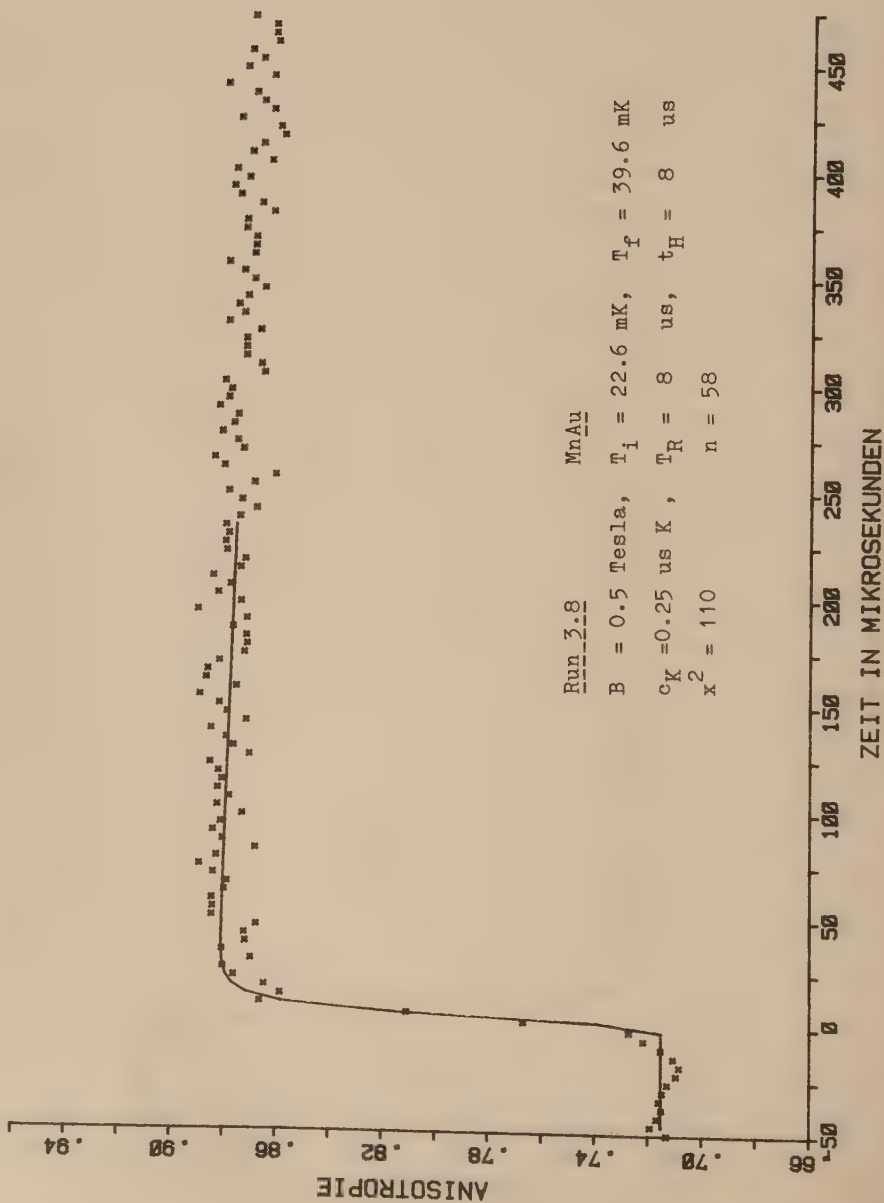




Run 3.7

MnAu

$B = 1.0$ Tesla, $T_i = 21.5$ mK, $T_f = 39.6$ mK
 $c_K = 0.27$ us K, $T_R = 10$ us, $t_H = 8$ us
 $\chi^2 = 65$ $n = 58$



4.2.2 Die Frage magnetfeldabhängiger thermischer Effekte

Wichtig für die vorgestellte Messmethode ist, ob neben der Relaxationszeit ein anderer entscheidender Parameter vom externen Magnetfeld abhängt, insbesondere die thermische Zeitkonstante.

Die beiden folgenden Abbildungen zeigen, daß bei der thermischen Zeitkonstante keine nennenswerte Magnetfeldabhängigkeit zu beobachten ist. (Abb. 4.2. und 4.3.)

Die erste Abbildung zeigt den Temperaturzyklus für die Kupferprobe als γ - Anisotropie für die gemessenen sechs Felder. Die Kurven sind zeitlich versetzt dargestellt, da sie sonst aufeinanderfielen.

Von rechts nach links sind die Kurven für 0.5 T, 1 T, 2 T, 3 T, 4 T und 5.4 T dargestellt. Die Zeitkonstanten zeigen scheinbar eine systematische Feldabhängigkeit.

Nach Umrechnung in Temperaturen und Bildung der Temperaturdifferenzen $T = T_f - T_i$ ergibt sich wie erwartet eine feldunabhängige e - Funktion, wie aus der logarithmischen Darstellung im folgenden Bild zu entnehmen ist.

Die thermische Relaxationszeit beträgt für die Kupfer-Probe ca. 5 msec und ist in guter Übereinstimmung mit den Abschätzungen auf Grund der Literaturwerte für Wärmekapazität und Wärmeleitvermögen für Kupfer im interessierenden Temperaturbereich.

Im Falle der Silber- und der Goldprobe ergeben sich entsprechende Kurven. Die thermischen Zeitkonstanten dieser Probenaufhängungen waren so gewählt, daß sich ungefähr gleiche Zeitkonstanten ergaben. Wie schon erwähnt, sind diese nur für die Minimierung der Meßzeit wichtig.

Diese Kurven zeigen deutlich, daß der Einfluß der magnetfeldabhängigen Wärmekapazität des Kupfers auf Grund der dagegen langen Kernspingitterrelaxationszeit im Bereich von Millisekunden bereits vernachlässigbar ist.

Daß die Größe des Temperatursprungs durch diese zusätzliche

Wärmekapazität verringert wird, ist an den Temperaturkurven ersichtlich, jedoch ist dieser Effekt nicht so groß, wie es bei Betrachtung der Anisotropiekurven den Anschein hat.

Die geringen Abweichungen von der Geraden bei den logarithmischen Temperaturkurven können möglicherweise damit zusammenhängen, daß die Betrachtung der Probenfolie als Kapazität und des Kupferdrahtes (die Probenaufhängung) ausschließlich als Widerstand nicht ausreicht, sondern das System ein komplizierteres Verhalten zeigt.

Die Meßgenauigkeit hierbei ist jedoch sehr viel höher, als die der eigentlichen Meßkurven ($156 \mu\text{sec}$ / Kanal statt 10 bzw. $4 \mu\text{sec}$ / Kanal), sodaß Effekte, die bei den thermischen Kurven gerade oberhalb der statistischen Genauigkeit liegen, für die Meßkurven erst recht zu vernachlässigen sind. Außerdem ist zu berücksichtigen, daß die eigentlichen Meßkurven nur einen vergleichbar kleinen Zeitbereich umfassen, nämlich 2.5 msec bei $10 \mu\text{sec}$ Auflösung und 1 msec bei 4 sec Zeitauflösung. Abweichungen der thermischen Relaxationskurve von der logarithmischen Form über einen Zeitbereich von 20 msec sollten auch von daher nicht überbewertet werden.

Wichtig ist in diesem Zusammenhang noch, ob die Probenaufheizung als homogen zu betrachten ist.

Dies kann durch die Relaxationskurven bei den niedrigen Feldern gezeigt werden. Hier entspricht der Verlauf der Anisotropie sehr gut der angenommenen Temperaturkurve. Bei inhomogener Aufheizung sollte keine "Stufenfunktion" sichtbar sein.

Siehe hierzu auch die Abbildung 4.1. im Kapitel 4.1.4.

Abbildung 4.2. (Erklärungen im Text)

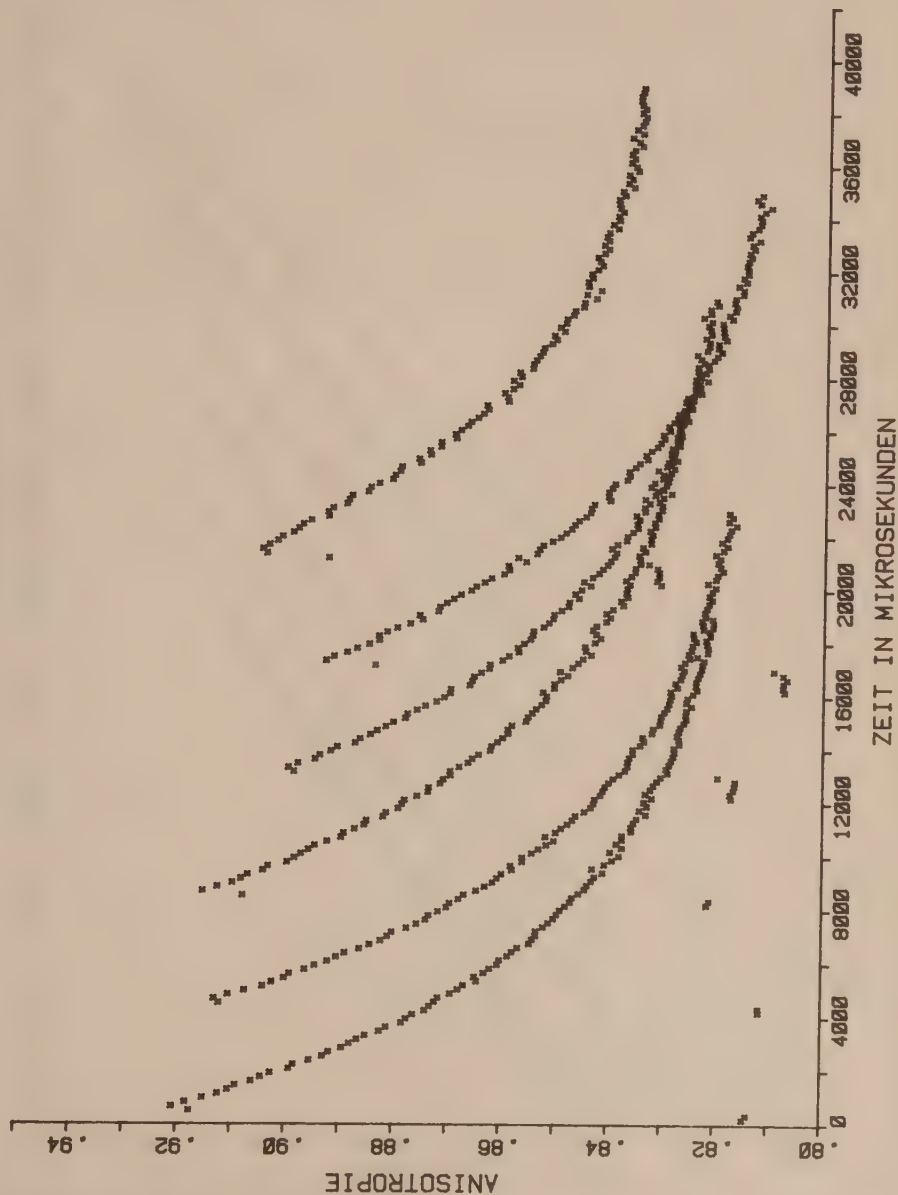
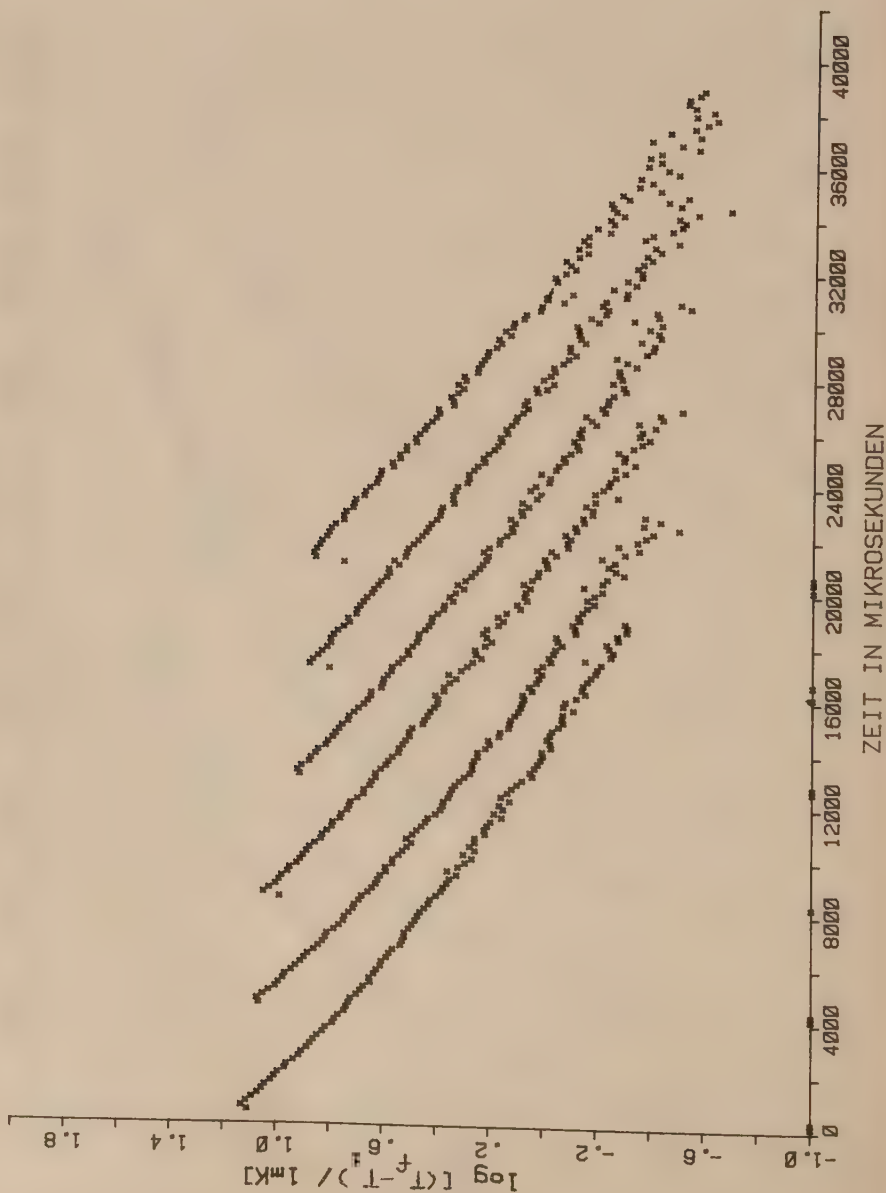


Abbildung 4.3. (Erklärungen im Text)



4.2.3. Zusammenfassung der Ergebnisse

In der folgenden Tabelle sind die Ergebnisse aller Messungen zusammengestellt. Es bedeuten im einzelnen:

- c_K = Korringakonstante in $\mu\text{sec K}$
 B_{ext} = externes Magnetfeld in Tesla
 T_i = Temperatur in mK, bei der die Relaxation beginnt.
 T_f = Temperatur nach dem Heizpuls in mK
 T_R = Relaxationszeit, näherungsweise durch einfache
 e - Funktion ermittelt in μsec .
 x^2 = χ^2
 n = Anzahl der Freiheitsgrade für χ^2 -Test

Run	Wirt	B_{ext}	c_K	T_i	T_f	T_R	x^2	n
1.2	Cu	5.4	2.00	18.3	26.0	58	52	58
1.3	Cu	4.0	1.43	17.9	25.9	50	46	59
1.4	Cu	3.0	0.91	19.3	28.0	33	84	59
1.5	Cu	2.0	0.73	20.3	32.4	24	80	59
1.6	Cu	1.0	0.34	20.4	33.5	13	113	59
1.7	Cu	0.5	<0.31	21.2	36.3	<13	116	59
2.2	Ag	5.4	3.50	18.9	26.8	100	18	99
2.9	Ag	5.4	2.89	17.5	23.0	81	73	59
2.16	Ag	5.4	4.10	21.6	33.6	101	68	59
2.3	Ag	4.0	2.18	19.0	27.6	64	94	99
2.10	Ag	4.0	1.93	16.5	24.2	55	68	59
2.4	Ag	3.0	1.28	18.4	26.9	40	89	99
2.11	Ag	3.0	1.40	19.3	32.9	38	40	59
2.12	Ag	2.0	0.88	20.7	39.0	26	69	58
2.6	Ag	1.0	0.29	18.3	34.4	11	43	48
2.13	Ag	1.0	0.45	22.5	43.3	15	84	58

Run	Wirt	B _{ext}	c _K	T _i	T _f	T _R	x ²	n
2.8	Ag	0.5	--	18.7	28.1	< 5	42	48
2.14	Ag	0.5	<0.36	22.4	42.6	<13	71	58
2.15	Ag	0.25	<0.42	25.4	48.2	<14	56	58
3.3	Au	5.4	2.90	20.8	35.8	70	58	60
3.4	Au	4.0	2.04	21.4	39.5	55	74	60
3.5	Au	3.0	1.16	21.3	40.2	44	121	60
3.6	Au	2.0	0.63	21.5	41.4	19	99	58
3.7	Au	1.0	0.27	21.5	39.6	10	65	58
3.8	Au	0.5	<0.25	22.6	39.6	< 8	110	58

relativer Fehler der Korringakonstanten :

statistisch 5 %, gesamt 20 %

relativer Fehler der Temperaturen : 3 %

5. Diskussion der Ergebnisse

5.1. Vergleich mit der Korringa-Formel

Eine grundlegende Formel zur Beschreibung der Kernspingitter-relaxationszeiten in Metallen ist die von Korringa (KOR 50) angegebene Beziehung. (siehe auch WAR 71 , PAK 56)

$$T_1 T K^2 = \frac{\hbar}{4\pi k_B} \frac{\gamma_e^2}{\gamma_n^2}$$

mit $K = \Delta B/B$

Sie verknüpft die Knightshift K mit der Relaxationszeit ohne weitere systemabhängige Parameter. Die Wechselwirkung mit den Leitungselektronen wird in der Weise beschrieben, daß die Vielteilchen - Wellenfunktion durch eine Einteilchen Wellenfunktion ersetzt wird. (Bloch - Näherung). Die Wechselwirkung der Elektronen untereinander kann daher nicht berücksichtigt werden. Die Korringa-Formel kann daher als Test angesehen werden, wie weit diese Beschreibung ausreicht.

Die Wechselwirkung des Kernspins mit den Leitungselektronen wird hierbei durch eine Fermi-Kontakt-Wechselwirkung beschrieben, ohne Annahme einer Wechselwirkung über ein Lokales Moment.

Eine erweiterte Formel benutzt Narath (NAR 73) zur Beschreibung der Relaxationszeiten an Systemen mit schwacher Hyperfeinkopplung (z.B. MnAl).

Hier können über die Messung von T_1 die Spin- und Bahn-Beiträge der Hyperfeinwechselwirkung getrennt werden. Man nutzt dabei aus, daß die Beiträge des d-Bahnmomentes und des d-Spinmomentes (Core - Polarization) zur Knightshift verschiedene Vorzeichen haben, daher die Beträge zur Knightshift zu subtrahieren, die Beiträge zur Relaxationsrate zu addieren sind.

Damit ist nach Narath eine recht befriedigende Erklärung der Relaxationszeiten an Systemen mit schwacher Hyperfeinwechselwirkung (d.h. ohne Lokales Moment) möglich.

Eine Anwendung der Korringaformel auf Systeme mit Lokalen Momenten ist formal möglich, indem man für die Knightshift K einsetzt:

$$K = \Delta B / B = \frac{B_{\text{Hyp}} - B_{\text{ext}}}{B_{\text{ext}}}$$

Man erhält dann für K , abhängig von B_{ext} , Werte von ca. 5 - 50, statt der sonst üblichen Werte von wenigen Prozent.

Das heißt, man geht von der falschen Annahme aus, daß die Hyperfeinwechselwirkung ohne das Lokale Moment bewirkt würde, nur durch eine entsprechend starke direkte Hyperfeinkopplung der Leitungselektronen mit dem Kernspin.

Die so berechneten Relaxationszeiten sind um einen Faktor 10 (Cu) bis 25 (Ag, Au) zu klein, jedoch ergibt sich annähernd die Feldabhängigkeit $c_K / B_{\text{ext}}^2 = \text{const.}$ mit $K \approx B_{\text{Hyp}} / B_{\text{ext}}$, ebenso wie in der noch zu besprechenden Theorie von Walstedt - Narath und auch in den hier durchgeführten Messungen.

Die von Narath in NAR 73 für magnetische Verunreinigungen ohne Lokales Moment durchgeführten Berechnungen ergeben um einen Faktor 5 längere Relaxationszeiten; damit ergeben sich noch Differenzen um einen Faktor 2 - 5 von den hier durchgeführten Messungen. Diese sind in den folgenden Abbildungen (Abb. 5.1 bis 5.3) mit dargestellt.

5.2. Vergleich mit den Berechnungen von Walstedt und Narath

Eine spezielle Berechnung der Relaxationszeiten an Systemen mit Lokalen Momenten für MnCu wurde von Walstedt und Narath (WAL 72) durchgeführt unter Berücksichtigung der bekannten Eigenschaften dieser Systeme.

Es werden zwei Ansätze benutzt, die im wesentlichen zu demselben Ergebnis führen. Die Berechnung wird durchgeführt in Störungstheorie zweiter Ordnung und mit dem sog. "Dynamic Suszeptibility Formalism". Für den letzteren werden die von Götze und Wölfle (GOE 71) berechneten dynamischen Suszeptibilitäten benutzt.

Die Ergebnisse sind in den folgenden Abbildungen mit dargestellt.

Die Hyperfein-Wechselwirkungskonstante A_d wurde für Mn-54 umgerechnet. Für die Systeme MnAg und MnAu wurde ebenfalls nur A_d entsprechend geändert. (siehe Abb.5.1., 5.2., 5.3.)

Wie in Abbildung 5.4 (aus WAL 72) zu sehen, gibt es zwei Bereiche mit unterschiedlichem Temperaturverhalten.

Im oberen Temperaturbereich ist T_1 feldunabhängig und proportional der Temperatur. Im unteren Teil gilt :

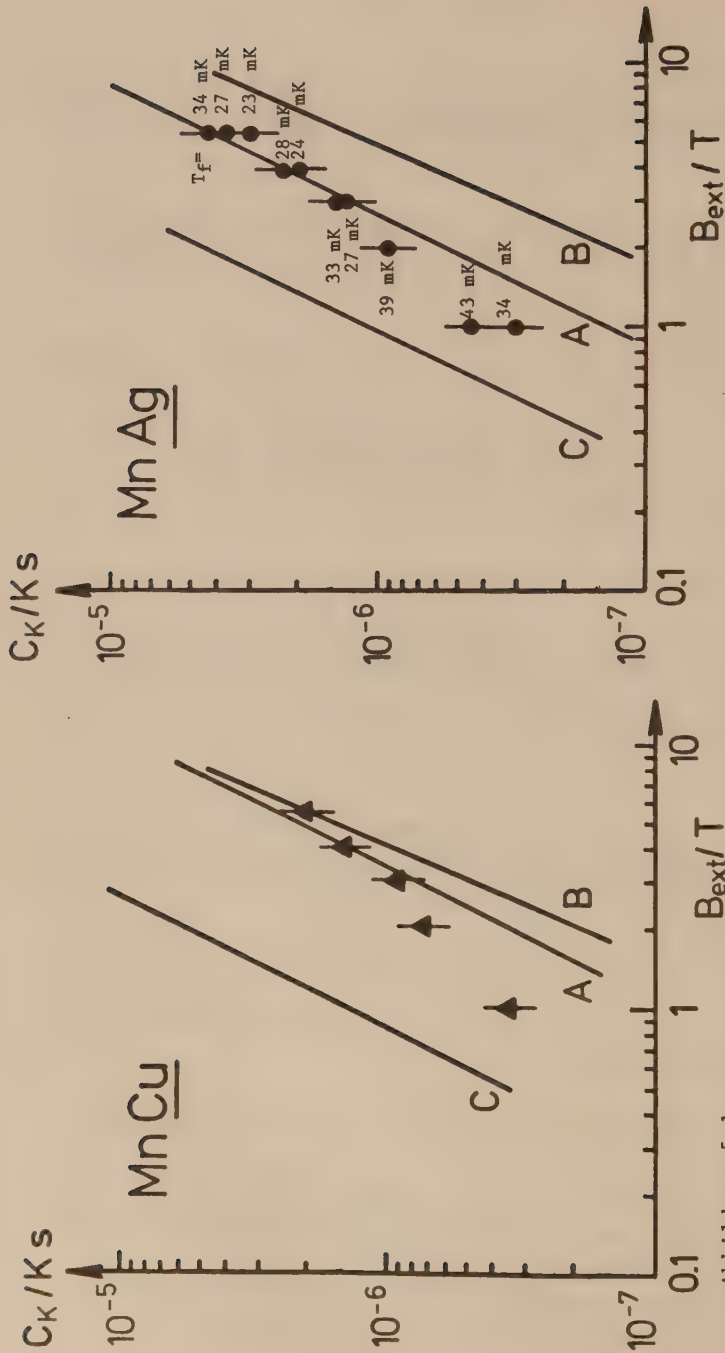
$$T_1 \cdot T \sim B_{\text{ext}}^2 .$$

Hier gilt also auch die aus dem Korringa-Gesetz bekannte Temperaturabhängigkeit.

Die Werte c_K/B_{ext}^2 sind in der folgenden Tabelle gegenüber-

gestellt, wie sie sich für die eigenen Messungen, die Korringarelation nach Narath (NAR 73) und die Berechnungen nach Walstedt und Narath (WAL 72) ergeben.

Die von Walstedt und Narath berechneten Werte für T_1 sind danach um einen Faktor 17 (Cu) bis 6 (Au) zu groß.



Abbildung_5.1.

Korringakonstante c_K in Abhängigkeit vom Magnetfeld für MnCu

A eigene Messungen unter der Annahme $c_K \sim B_{ext}^2$

B Korringagesetz nach Narath (NAR 73) für Systeme ohne Lokales Moment

C nach Walstedt - Narath (WAL 72) siehe auch Text

Abbildung_5.2.

Korringakonstante c_K in Abhängigkeit vom Magnetfeld für MnAg, Notation wie Abb. 5.1.

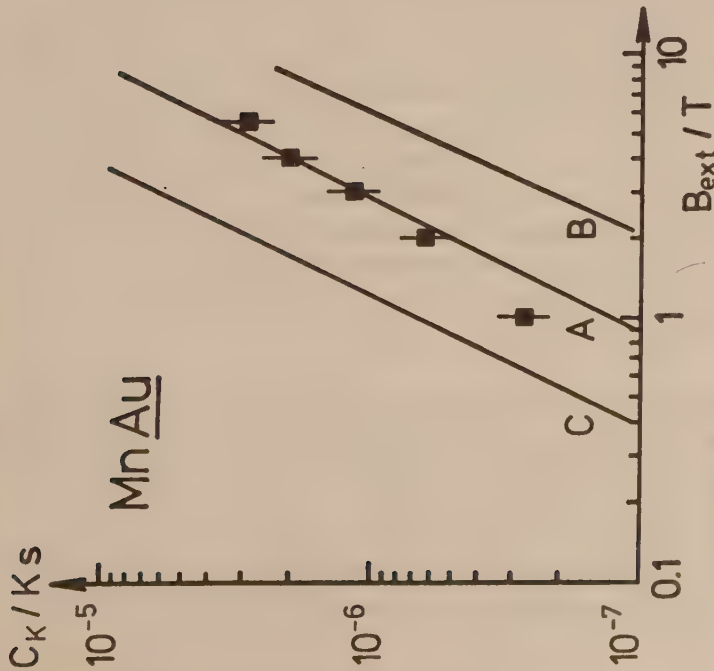


Abbildung 5.3.

Korringakonstante c_K in Abhängigkeit vom Magnetfeld für MnAu , Notation wie Abb. 5.1.

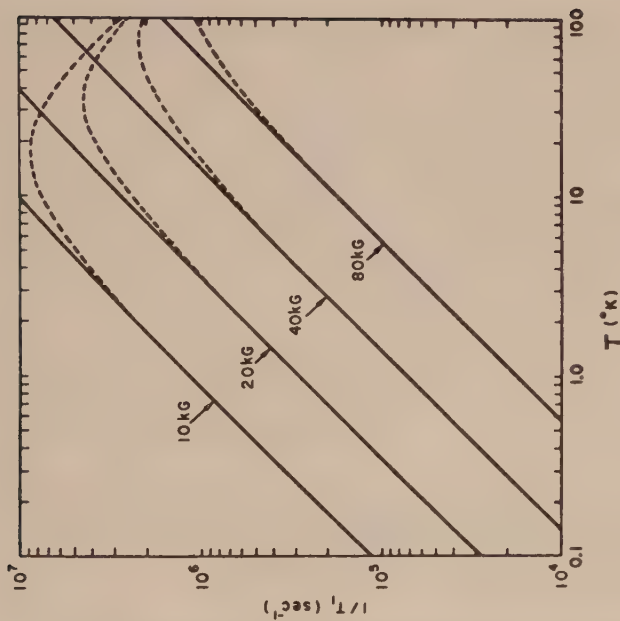


Abbildung 5.4. (zit. aus WAL 72)

Kernspingitterrelaxationsrate $1/T$ (in sec^{-1}) in Störungsrechnung 2. Ordnung für Mn-55 in Cu in Abhängigkeit von der Temperatur (in K) bei verschiedenen Magnetfeldern. Unterbrochene Linien zeigen die Annäherung an den feldunabhängigen Bereich mit $T_1 \sim T$ im Hochtemperaturbereich.

Tabelle 5.1.

System	I	A	I	B	I	C	I
MnCu		0.085		0.0463		1.42	
MnAg		0.14		0.0334		1.03	
MnAu		0.13		0.0222		0.70	

A c_K/B_{ext}^2 in $10^{-6} \text{ K s T}^{-2}$

eigene Messungen

B dto

Korringarelation nach NAR 73

C dto

Walstedt u. Narath (WAL 72)

Es fällt auf, daß die gemessenen Korringakonstanten vom Kupfer zum Gold zunehmen, bzw. nahezu gleich sind, während beide Rechnungen das gegenteilige Ergebnis liefern.

Durch Verwendung anderer Werte für die Kondo-Kopplung J_{sd} und die Zustandsdichte an der Fermikante $n(E_F)$ dürften diese Unterschiede trotz der quadratischen Abhängigkeit nicht zu erklären sein. (benutzte Werte in WAL 72 : $J_{sd} = 1 \text{ eV}$, $n(E_F) = 0.16 \text{ (eV)}^{-1}$ für ein Atom und eine Spinrichtung) Auch die von Walstedt und Narath benutzte Näherung $\hbar \omega_n \beta \ll 1$, mit $\beta = (k_B T)^{-1}$, die bei unseren Messungen nicht zutrifft, kann für die auftretenden Abweichungen nicht verantwortlich gemacht werden. Die benutzte Näherung ist genauer :

$$1 - e^{-\hbar \omega_n \beta} \approx -\hbar \omega_n \beta$$

Wie schon erwähnt, ist die Größe $\hbar \omega_n \beta$ für die "Wechselwirkungstemperatur" T_{int} gleich eins gesetzt. Wie für NO - Messungen typisch, beträgt bei unseren Messungen $T_{\text{int}}/T \approx 0.3$, d.h. es gilt $T_{\text{int}}/T = \hbar \omega_n \beta \approx 0.3$.

Der Fehler bei Anwendung dieser Näherung ist aber von der Größenordnung (T_{int}/T^2) . Außerdem wurde dieser Effekt -die Abweichung vom $T_1 T$ -Gesetz bei Kernorientierungsmessungen-

schon bei der Berechnung der Korringakonstante berücksichtigt. Eine weitere Frage ist, ob die verwendeten geringen Konzentrationen von ca 0.5 ppm bei einer Temperatur von 30 mK auch klein genug sind, um Wechselwirkungen der Verunreinigungen untereinander noch vernachlässigen zu können.

Aus Magnetisierungsmessungen an MnCu nimmt man für 10 mK eine Konzentrationsgrenze von 5 ppm (WOH 73 S.19) an für das Auftreten von Spinglasverhalten auf Grund der RKKY-Wechselwirkung.

Andere (DAY 73) geben als Kriterium für die Beobachtung von "single-impurity" -Effekten an :

$$c / T_{\text{Kondo}} < 50 \text{ ppm/K}$$

Nach diesen Kriterien liegen alle Proben noch nicht im Bereich von Wechselwirkungen der Verunreinigungen untereinander.

Für die Systeme MnCu und MnAg liegen die Meßtemperaturen im Bereich ihrer Kondotemperatur, liegen also im Bereich der sog. Kondoanomalien.

Jedoch liegen bei den verwendeten Magnetfeldern die Aufspaltungsenergien der Spins der Lokalen Momente für 1 Tesla bei $\Delta E/k_B = T_e = 1.34 \text{ K}$ (mit $g = 2$).

Es ist üblich, trotz der hohen Werte für $J_{\text{sd}} \sim 1 \text{ eV}$, den Wert $k_B T_K$ zum Vergleich der Größenordnung der Wechselwirkungen untereinander heranzuziehen.

Danach ist die Kondokopplung "aufgebrochen", da $T_e \gg T_K$ gilt und braucht, wie auch bei WAL 72, nicht berücksichtigt zu werden.

Jedoch sind für MnCu und MnAg die Hyperfeinwechselwirkungskonstanten von der Ordnung $k_B T_K$.

Leider ermöglicht die NO-Technik nicht, über größere Temperaturbereiche zu messen.

Meßmethoden, die den Hochtemperaturbereich abdecken (im Sinne der Abb. 5.4.), sind die NMR-Messungen im

Temperaturbereich 1050 K - 1425 K an MnCu von Walstedt und Warren (WAL 73), sowie die NMR-Messungen an MnCu von Kume und Mizoguchi (KUM 75) .

Messungen von Alloul u.a. (ALL 79b) benutzen das NMR-Signal der Nachbar-Cu-Atome (mit Hilfe von NMR-Satellitenlinien). Weitere Methoden sind die Messung der Relaxationszeit des Hüllenspins mit Hilfe von ESR und von Neutronenstreuungsmessungen.

Eine Übersicht über NMR-, ESR- und eigene Messungen mit Neutronenstreuung gibt Murani (MUR 81).

Die Werte nach Murani (MUR 81) für $J_{sd} n(E_F)$ ergeben für die Relaxationszeiten nach Walstedt-Narath (WAL 72) für MnAg um einen Faktor 2 und für MnAu um einen Faktor 3 längere Zeiten und würden damit die folgenden Werte für c_K/B_{ext}^2 ergeben : MnAg : $2.17 \mu s K T^{-2}$ und

MnAu : $2.19 \mu s K T^{-2}$. (vgl. Tabelle 5.1.)

Damit ergibt sich eine ähnliche Wirtssystematik wie bei den hier gezeigten Messungen, d.h. die nach WAL 72 berechneten Relaxationszeiten sind für alle drei Systeme um einen Faktor 16 zu groß.

5.3. Vergleich mit der elektronischen Relaxationsrate

Ein anderer Weg zur Interpretation der Kernspingitterrelaxationszeiten ist der Vergleich mit der Relaxationszeit des Hüllenspins. Es ist bekannt, daß im wesentlichen unter

der Bedingung $T_{1e}^{-1} \gg \omega_n$ gilt $T_{1n} \sim T_{1e}^{-1}$. (ABR 61, SLI 63 S.142)

Dies trifft zum Beispiel im oberen Temperaturbereich in den Berechnungen von Walstedt-Narath (WAL 72) zu; hier ist $T_{1e} T = \text{const.}$, daher $T_{1n} \sim T$. (vgl. Abb. 5.4.)

Die Korrelationszeit des Hüllenspins kann also mit Hilfe von T_{1n} gemessen werden. Damit ist ein unmittelbarer Vergleich mit ESR- und Neutronenstreuungsmessungen möglich.

Eine Anwendung dieses Ansatzes auf einen anderen Grenzfall, nämlich auf den für NO üblichen Temperaturbereich ($T \approx 20 \text{ mK}$), wurde von Spanjaard und Hartmann-Boutron durchgeführt.

(SPA 73, siehe auch SPA 72)

Zunächst treten dabei die bekannten Probleme mit der Beschreibung der Temperaturabhängigkeit von T_{1e} auf. Wie im Fall des Kernspins wird T_{1e} temperaturunabhängig, wenn $\hbar \omega_e \approx k_B T$ gilt. Zusätzlich gelten die gleichen Modifikationen wie im Fall des Kernspins. Insbesondere kann eine Relaxationszeit T_{1e} nur für den Fall $S = 1/2$ definiert werden. Die sinnvolle Definition einer Konstante $c_{Ke} = T_{1e} T$ (bei SPA 72 Def. $C_K^{-1} = T_{1e} T$) bleibt davon unberührt.

Für den Fall der "schnellen elektronischen Relaxation", d.h. $T_{1e} \ll 2\pi/\omega_n$ ist dann :

$$T_{1n}^{-1} = c_{Ke}^{-1} \frac{\hbar \omega_n}{2 k_B} - \frac{\omega_n^2}{\omega_e^2} \coth \frac{\hbar \omega_n}{2 k_B T}$$

Dieser Ausdruck enthält bereits die Abweichung vom $T_1 \cdot T$ - Gesetz bei niedrigen Temperaturen. Die Hochtemperaturnäherung

ist dann mit $\lim_{x \rightarrow 0} (x \coth x) = 1$ wie folgt:

$$T_{1n} \cdot T = c_{Ke} \omega_e^2 / \omega_n^2$$

Mit $\omega = \gamma B$ wird daraus :

$$T_{1n} \cdot T = c_{Ke} (\gamma_e / \gamma_n)^2 \frac{B_{ext}^2}{(B_{Hyp} - B_{ext})^2} \quad (\text{vgl. Kap. 5.1.})$$

Damit ergeben sich beispielsweise für $B_{ext} = 1 \text{ T}$ folgende Werte für c_K , unter Verwendung folgender Werte für die Konstante c_{Ke}^{-1} der elektronischen Relaxationszeit. (MUR 81)

$$Cu : 1.18 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-1}; Ag : 0.57 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-1};$$

$$Au : 0.38 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-1} .$$

$$c_K(Cu) = 1.29 \cdot 10^{-6} \text{ s K} , c_K(Ag) = 1.93 \cdot 10^{-6} \text{ s K} ,$$

$$c_K(Au) = 1.92 \cdot 10^{-6} \text{ s K} .$$

Die damit erhaltenen Werte sind um einen Faktor 15 größer, als die erhaltenen Meßwerte (vgl. Tabelle 5.1.) entsprechend den Kurven "A" in den Abbildungen 5.1 bis 5.3 .

Ein Vergleich mit den direkt bei z.B. 1 Tesla gemessenen Werten ist eigentlich sinnvoller, da Muranis Werte praktisch im Nullfeld gemessen wurden. Allerdings ist zu beachten, daß bei den 1 Tesla-Meßwerten die Grenze des Zeitauflösungsvermögens schon erreicht ist. Beim Vergleich mit den bei 1 Tesla gemessenen Werten gemäß Kap. 4.2.3. ergeben sich nur noch Abweichungen um einen Faktor 4 (Cu) , 5 (Ag) und 7 (Au).

Es zeigt sich damit, daß die bisherigen Theorien die Kernspingitterrelaxationszeit innerhalb einer Größenordnung vorher-sagen, bzw. als zu hoch abschätzen. Es sei nochmals daraufhin-gewiesen, daß ein evtl. Fehler bei der Bestimmung der Tempera-turfunktion nur einen gegenteiligen Effekt erzeugen könnte. (vgl. Kap.4.1.4.).

Eine Temperaturabhängigkeit der Korringakonstanten c_K deutet sich im übrigen für MnAg an. (siehe Abb.5.2.) Mit steigender Meß-temperatur T_f ergibt sich ein höheres c_K .

Die aufgetretenen Abweichungen zu den erwähnten Theorien lassen sich wohl am besten als Kondoanomalien deuten. Diese sind in den Theorien noch nicht berücksichtigt, mit Ausnahme der Theo-rie von Götze und Schlottmann, die allerdings nur für ein Moment mit $S = 1/2$ gilt.

Im übrigen sei noch an die Hyperfeinfeldsystematik der Systeme mit Lokalen Momenten erinnert.

Wie schon erwähnt, hatte die Tatsache, daß die Energie der Hyperfeinaufspaltung von der Größenordnung $k_B T_{\text{Kondo}}$ ist, bei der Interpretation der Hyperfeinfelder und ihrer Abhängigkeit vom externen Feld (vgl. Kap.2.4.2.) im Bereich kleiner Felder nicht vernachlässigt werden können.

6. LITERATURVERZEICHNIS

- ABR 51 Abragam, A. and M.H.L. Pryce, 1951
Proc Roy Soc London A 205 , 105
zit. nach FLO 78
- ABR 61 Abragam, A.
The Principles of Nuclear Magnetism p.310
Oxford University Press , Oxford 1961
- ALL 79b Alloul, H., F. Hippert and H. Ishii
J. Phys. F9 , 725 (1979)
- AND 61 Anderson, P.W.
Phys. Rev. 124 , 41 (1961)
- BAB 80a Baberschke, K. and E. Tsang
Phys. Rev. Lett. 45, 1512 (1980)
- BAB 80b Baberschke, B., B. Bachor and S.E. Barnes
Phys. Rev. B 21, 2666 (1980)
- BAC 72b Bacon, F., J.A. Barclay, W.D. Brewer,
D.A. Shirley, 1972
Phys. Rev. B5, 2397
- BAR 71 Barclay, J.A., and H. Gabriel
J. Low. Temp. Phys. 4, 459 (1971)
- BEN 74a Benoit, A., J. Flouquet, and J. Sanchez
Phys. Rev. B9, 1092 (1974)
- BLA 59 Blandin, A., and J. Friedel, 1959
J. de Physique 20, 160

- BLA 73 Blandin, A. siehe SUH 73
- BRE 68a W.D.Brewer, D.A.Shirley and J.E.Templeton
Phys.Lett. 27A, 81 (1968)
- BRE 83 W.D.Brewer
Nuclear Orientation Kap. 9, erscheint 1983
North-Holland-Publishing-Company
- CHA 70 Chaplin, D.C., Don, C.G. and Wilson, G.V.H.
Phys.Lett. 32A, 137 (1970)
- DAY 73 Daybell, Melvin D.
siehe SUH 1973
- FLO 73 J.Flouquet
Ann.Phys. 8 , 5 , (1973)
- FLO 78 J.Flouquet
Progress in Low Temperature Physics Volume VII B
Edited by D.F.Brewer
North-Holland-Publishing-Company
- FOL 79 Follstaedt, D., A.Narath
Phys.Rev. B 19, 1374 (1979)
- FRE 65 Freeman A.J. and R.E.Watson, 1965
Magnetism II, eds. Rado and Suhl
Academic Press, New York p. 167
- GAB 69 H.Gabriel
Phys.Rev. 181 (1969) 506
- GOE 71 W.Götze und P.Wölfle
J. Low Temp.Phys. 5, 575-89 , (1971)

- GOE 74 W.Götze und P.Schlottmann
J. Low Temp. Phys. 16 (1974) 87
- GRU 78 Grüner, G. and A.Zawadowski
Progr.Low Temp. Phys. VIIB, 591 (1978)
- HAR 72 Hartmann-Boutron,F. and D.Spanjaard 1972
J. Phys. (Paris) 33, 285
- HAR 75 Hartmann-Boutron,F.
Ann. de Phys. 9, 285 (1975)
- HIR 70 Hirst,L.L. 1970
Phys.Kond.Mat. 11, 255
zit. nach BRE.83
- HIR 71 Hirst,L.L.
Z.Phys. 245, 378 (1971)
zitiert nach BRE 83
- HIR 74 Hirst,L.L. 1974, in Proc. Conf. on Mag and
Mag Mat,
AIP Conf.Proc.No 24, Eds. Graham, Lauder
and Rhyne, (AIP, N.Y. 1975), p.11
- KET 77 A.Kettschau, Diplomarbeit
FU-Berlin 1977, Fachbereich Physik
- KET 83 A.Kettschau, J.Boysen, W.D.Brewer and I.A.Campbell
Journal of Magn. and Magn. Mat. 37, L1 (1983)
- KLE 83 E.Klein
Nuclear Orientation Kap.12, erscheint 1983
North-Holland-Publishing-Company
- KOP 82 Michael P.Kopp, Doktorarbeit
FU-Berlin 1982, Fachbereich Physik

- KOR 50 J.Korringa
Physica XVI, no 7-8 (1950) S. 601
- KUM 75 K.Kume und K.Mizoguchi
Solid State Comm 16, 675-677
- LOE 76 Loewenhaupt
Journal of Magnetism and Magnetic Materials
2 (1976) 99-105
- LOU 74 Lounasmaa, O.V.
Experimental Principles and Methods below 1K
Academic Press, London and New York 1974
- MIL 73 Mills D.L., M.T. Beal-Monod and P.Lederer
in RAD 73
- MUR 81 A.P.Murani
Journal of Magnetism and Magnetic Materials
25 (1981) 68-76
- NAR 73 Albert Narath
siehe SUH 73, RUD73
- NO 83 "Nuclear Orientation"
erscheint 1983 bei
North-Holland-Publishing-Company
Amsterdam, New York, Oxford
- PAK 56 G.E. Pake
"Nuclear magnetic resonance"
in Solid State Physics
Advances in Research and Application, Volume 2
F.Seitz and P.Turnbull
Academic Press Inc. New York 1956

- RAD 73 Rado, G.T. and H. Suhl
Magnetism Volume I-V
ACADEMIC PRESS, New York, London
- RUD 54 Rudermann, M.A. and C. Kittel
Phys.Rev. 96, 99 (1954)
- SAN 78 Sanchez, J., J.Flouquet and W.D.Brewer
"Nuclear Orientation an Ag Mn-alloys"
Hyp. Int. 4, 415
- SLI 63 Charles P. Slichter
"Principles of Magnetic Resonance"
Harper and Row, New York, Eranston and London
- SPA 72 Spanjaard, D. and F.Hartmann-Boutron
Journal de Physique 33, 565 (1972)
- SPA 73 Spanjaard, D. und F.Hartmann-Boutron
J.Phys. F3 (1973) 1178
- SUH 73 Suhl, Harry, George T.Rado
"Magnetism V, Magnetic Properties of Metallic
Alloys"
ACADEMIC PRESS, New York, London 1973
- STO 71a N.J.Stone
in Hyperfine Interactions in Excited Nuclei
Gordon und Breach, New-York, 1 (1971) S.237
- TUR 80 B.G.Turrell
Hyp.Int. 7 (1980), 429
- WAL 72 R.E.Walstedt und A.Narath
Phys.Rev. B 6 Nr.11 4118 ,(1972)

- WAL 73 R.E.Walstedt and W.W. Warren
Phys.Rev.Lett. 31, 365, (1973)
- WAL 75 R.E.Walstedt and L.R.Walker
Phys.Rev. B11, 3280, (1975)
- WAR 71 William W. Warren , Jr
Phys.Rev. B3, S.3708 (1971)
- WAT 67 R.E.Watson
Freeman Frankel
Hyperfine Interactions
Academic Press, New York (1967), p.413
- WOH 73 Wohlleben, D.K. und Bryon Coles in
SUH 73
- ZEN 51 Zener, C.
Phys.Rev. 81, 440, 1951
zitiert nach BRE 83 und BLA 73

7. ZUSAMMENFASSUNG

Die Arbeit beschreibt die Entwicklung einer Methode zur Messung der Kernspingitterrelaxationszeit an Systemen mit Lokalen Momenten (MnCu , MnAg , MnAu) durch Tieftemperaturkernorientierung bei Temperaturen von 20 bis 30 mK.

Die zu messenden Zeiten liegen im Bereich von 10 bis 100 Mikrosekunden.

Es wird gezeigt, daß die Verwendung "schneller" Magnetfeldänderungen aus verschiedenen Gründen keine Messung zuläßt. Stattdessen wird ein Temperaturzyklus mit Temperatursprüngen von 10 mK innerhalb von 10 μs verwendet.

Die Möglichkeiten zur Verwendung dieser Methode unter diversen Bedingungen werden diskutiert.

Die Zeitauflösung der Temperaturmessung beträgt dabei bis zu 4 μs .

Insbesondere ermöglicht die Messmethode, noch bei Konzentrationen (0.5 ppm) zu messen, bei denen Wechselwirkungen der Verunreinigungen untereinander bei den verwendeten Temperaturen zu vernachlässigen sind.

Die erhaltenen Werte für die Kernspingitterrelaxationszeiten stimmen innerhalb einer Größenordnung mit den vorhandenen Theorien Überein.

Die Abschätzung mit Hilfe der Korringarelation (KOR 51) ergibt um zwei Größenordnungen zu schnelle Relaxationszeiten.

8. Anhang

Erläuterungen zum Verfahren der schnellen Magnetfeldänderung

Die folgende Abbildung zeigt, wie die bei verschiedenen sinusmodulierten Feldern auftretenden Wirbelstromleistungen bestimmt wurden.

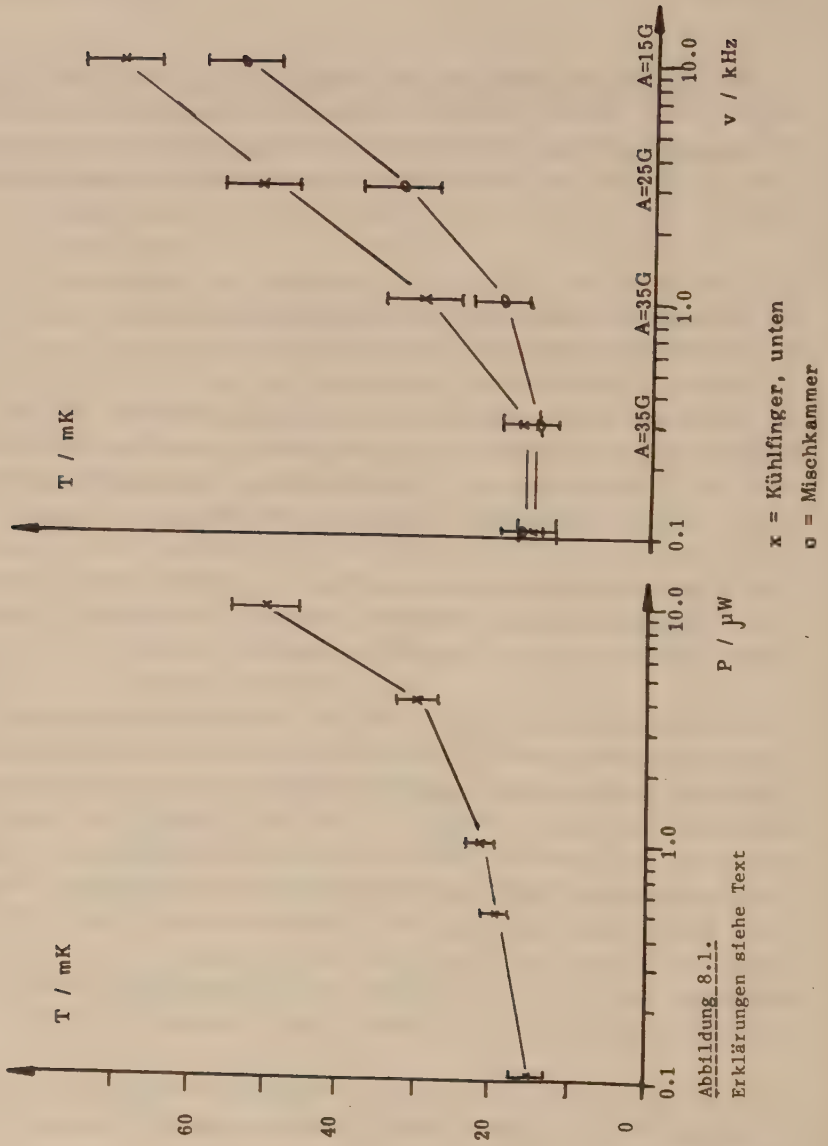
Die rechte Kurve zeigt die Abhängigkeit der Temperatur des Kryostaten in Abhängigkeit von der Wärmeleistung einer an der Mischkammer angebrachten elektrischen Heizung.

Die beiden linken Kurven zeigen die Temperaturen an der Mischkammer (o) und am unteren Ende des Kühlfingers (x) in Abhängigkeit von der Frequenz der Feldmodulation. Die Amplitude ($B_{\max} - B_{\min}$) beträgt 35 Gauss, bei den höheren Frequenzen 25 und 15 Gauss. Die Änderung der Amplitude war nötig, um zu vermeiden, daß der Temperaturbereich der beiden Kernthermometer verlassen wurde. Die Messung bezieht sich auf die (nicht aktivierte) Probe C in Tabelle 3.1.3.

Durch Vergleich der jeweils mit dem Kryostaten erreichbaren Temperaturen kann mit Hilfe der Temperatur an der Mischkammer (Symbol o) abgeschätzt werden, ob eine Messung mit der gewählten Probenanordnung auf Grund der Wärmelast durchführbar ist. Ein Vergleich des Mischkammerthermometers mit dem Thermometer am unteren Ende des Kühlfingers (Symbol x) gibt Auskunft über das Wärmeleitproblem, d.h. ob die Wärmelast ohne größere Temperaturdifferenzen abgeleitet werden kann.

Messungen zum Problem der thermischen Zeitkonstanten konnten mit dieser (nicht aktiven) Probe nicht durchgeführt werden.

Bei der Pulsmodulation sind solche Messungen nicht sinnvoll, da nicht von einem thermischen Fließgleichgewicht ausgegangen werden kann.



Diese Arbeit wurde am Institut für Atom- und Festkörperphysik (WE 1 a) der Freien Universität Berlin durchgeführt und von der Deutschen Forschungsgemeinschaft über den Sonderforschungsbereich 161 "Hyperfeinwechselwirkung" unterstützt.

Ich danke Herrn Prof. W. D. Brewer und Herrn Prof. E. Klein für die Betreuung dieser Arbeit sowie allen Mitarbeitern der Tieftemperaturgruppe, Herrn Dipl.-Phys. J. Boysen, Herrn Dipl.-Phys. M. Kopp, Dipl.Phys. B. Illerhaus für wertvolle Diskussionen, Ratschläge und Unterstützung an den Tieftemperaturkryostaten.

Herrn Muschert und Herrn Thiel danke ich für zahlreiche feinmechanische und schwierige Schweißarbeiten.

Berlin, 10.10.1983

Lebenslauf

- 8.6.1949 geboren als Sohn von Heinrich und Lise-Lotte Kett-
schau in Warburg / Westfalen
- 1956 - 60 Besuch der Evangelischen Volksschule in Warburg
- 1960 - 68 Besuch des Altsprachlichen Gymnasiums in Warburg
Abitur dort am 6.6.1968
- 1.7.68 - 31.12.69 Wehrdienst als Wehrpflichtiger bei der Bundeswehr
- 1.1.70 - 31.3.72 Grundstudium der Physik an der Universität Bonn
- 22.10.71 Ablegen der Diplomvorprüfung
- 1.4.72 - 30.9.77 Hauptstudium im Fach Physik an der Freien Uni-
versität Berlin
- 1.10.74 - 30.9.80 Tätigkeit als Tutor im "Physikalischen Praktikum
für Mediziner, Pharmazeuten und Geologen"
- 27.7.77 Abschluß der Diplomprüfung im Fach Physik.
Thema der Diplomarbeit: Mössbauerspektroskopie
an ionenimplantiertem Co-57 in Diamant, Silizium,
Germanium und alpha-Zinn.
- 1.10.77 - 28.2.83 Tätigkeit als Wissenschaftlicher Angestellter am
Sonderforschungsbereich 161 der Deutschen Forschungs-
gemeinschaft in der Arbeitsgruppe: Tieftemperatur-
kernorientierung an verdünnten Legierungen.
- 1.4.80 - 28.2.83 Promotionsarbeit über Hyperfeinwechselwirkungen
magnetischer Verunreinigungen in nicht-ferromagne-
tischen Metallen.
- Seit 1.4.83 Tätigkeit als Wissenschaftlicher Angestellter bei der
"Bundesanstalt für Materialprüfung" im Vorhaben über
Anwendungen der Computertomographie in der Material-
prüfung und über die Qualitätskontrolle radioaktiver
Abfälle mit der Computertomographie.

Arnold Kettschau

